

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2004-323509

(43)Date of publication of application : 18.11.2004

(51)Int.Cl. C07C211/61

C07D207/34

C07D209/82

C07D209/88

C07D213/74

C07D215/46

C07D217/22

C07D219/06

C07D219/14

C07D221/10

C07D223/24

C07D241/48

C07D265/38

C07D279/26

C07D295/12

C07D307/91

C07D333/36

C07D333/54

C07D471/04

C09K 11/06

H05B 33/14

H05B 33/22

(21)Application number : 2004-085036 (71)Applicant : MITSUBISHI CHEMICALS

CORP

(22)Date of filing : 23.03.2004 (72)Inventor : IIDA KOUICHIRO
SHIOTANI TAKESHI
SOMA MINORU
SATO YOSHIHARU

(30)Priority

Priority number : 2003103010

Priority date : 07.04.2003

Priority country : JP

(54) 2,7-DIAMINONAPHTHALENE COMPOUND, ELECTRIC CHARGE
TRANSPORTING MATERIAL, MATERIAL FOR ORGANIC
ELECTROLUMINESCENT ELEMENT AND THE ORGANIC
ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide an organic electroluminescent element having high electric current efficiency and light-emitting efficiency, capable of being driven by a low voltage, having excellent driving stability and heat resistance, and having stable light-emitting characteristics.

SOLUTION: A new 2,7-diaminonaphthalene compound is expressed by general formula (I) (R1, R2, R3 and R4 are each an aromatic radical which may be substituted, or R1 and R2 are together combined to be formed into a ring which may be substituted and R3 and R4 are together combined to be formed into a ring which may be substituted, provided that at least one of R1, R2, R3, R4, the ring formed by together combining R1 and R2 and the ring formed by together combining R3 and R4 is an aromatic condensed ring radical which is formed by condensing 3 or more rings and may be substituted). The organic electroluminescent element has a layer containing the 2,7-diaminonaphthalene compound.

*** NOTICES ***

**JPO and INPIT are not responsible for any
damages caused by the use of this translation.**

1.This document has been translated by computer. So the translation may not
reflect the original precisely.

2.*** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

CLAIMS

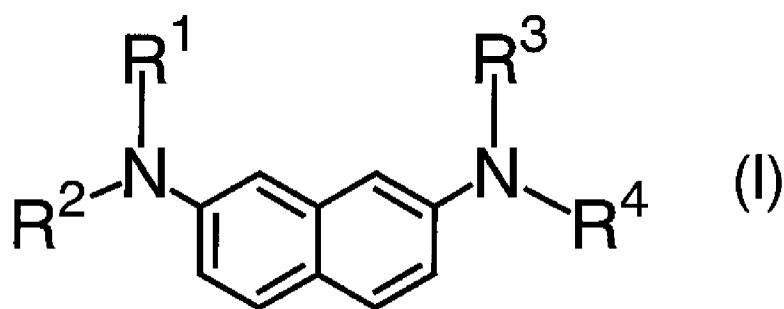
[Claim(s)]

[Claim 1]

A 2,7-diamino naphthalene compound expressed with following general formula

(I).

[Formula 1]



(Among general formula (I), the aromatic group which may have a substituent is expressed independently respectively, or R¹, R² and R³, and R⁴ join together, and R¹ - R⁴ form respectively the ring which may have a substituent independently.)

However, at least one of the ring which R¹ - R⁴, and R¹ and R² combine and form, and the rings which R³ and R⁴ combine and form expresses the aromatic condensed ring group which three or more rings condense and which may have

a substituent.

[Claim 2]

The 2,7-diamino naphthalene compound according to claim 1 whose aromatic condensed ring group which three or more rings condense, and which may have a substituent is a phenanthryl group which may have a substituent.

[Claim 3]

A charge transporting material containing the 2,7-diamino naphthalene compound according to claim 1 or 2.

[Claim 4]

Organic electroluminescence-devices material containing the 2,7-diamino naphthalene compound according to claim 1 or 2.

[Claim 5]

Organic electroluminescence devices having a layer containing the 2,7-diamino naphthalene compound according to claim 1 or 2 in organic electroluminescence devices which have a luminous layer between the anode and the negative pole.

[Claim 6]

The organic electroluminescence devices according to claim 5 which have a layer containing said 2,7-diamino naphthalene compound between the anode

and a luminous layer.

2.*** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[Field of the Invention]

[0001]

This invention relates to a new 2,7-diamino naphthalene compound, the charge transporting material using this, an organic electroluminescence-devices material, and organic electroluminescence devices. The new 2,7-diamino naphthalene compound especially suitable as a stratification material of electron hole transportability used for the organic electroluminescence devices as a thin film type device which emits light applying an electric field to the luminous layer which comprises an organic compound in detail, It is related with the charge transporting material using this, an organic electroluminescence-devices material, and the organic electroluminescence devices that provided this 2,7-diamino naphthalene compound *****.

[Background of the Invention]

[0002]

The EL element produced from the above-mentioned inorganic material

although what doped Mn which is a luminescence center, and rare earth elements (Eu, Ce, Tb, Sm, etc.) was common to ZnS and CaS which are II-VI group compound semiconductors of an inorganic material, SrS, etc. as a thin film

type electroluminescence (EL) element conventionally,

1) An alternating current drive is necessary (50-1000 Hz),

2) Driver voltage is high (~200V),

3) Full color-ization is difficulty (especially blue),

4) The cost of a circumference drive circuit is high,

It has a problem to say.

[0003]

However, development of the EL element using an organic thin film came to be performed in recent years for improvement of the above-mentioned problem. In order to raise luminous efficiency especially, it aims at the improve efficiency of carrier pouring from an electrode, By development (Appl.Phys.Lett., 51 volumes, 913 pages, 1987) of the organic electroluminescence devices which provided the electron hole transporting bed which optimizes the kind of electrode and comprises aromatic diamine, and the luminous layer which comprises the aluminium complex of 8-hydroxyquinoline. An extensive improvement of

luminous efficiency is made as compared with the EL element using single crystals, such as the conventional anthracene, and the practical use characteristic is approached.

[0004]

Besides the electroluminescence devices using the above low molecule materials, as a material of a luminous layer, Poly (p-phenylenevinylene), poly [2-methoxy-5-(2-ethylhexyloxy)-1,4-phenylenevinylene], Development of the electroluminescence devices using polymer materials, such as poly (3-alkyl thiophene), and development of the element which mixed a low-molecular luminescent material and electronic transition material to polymers, such as a polyvinyl carbazole, are also performed.

[0005]

In order to apply organic electroluminescence devices to light sources, such as a flat panel display and a back light, it is necessary to fully secure the reliability of an element. However, the conventional organic electroluminescence devices of heat resistance are insufficient, Current/voltage characteristics shifted to the high-tension side by the rise of the environmental temperature of an element, or process temperature, a life did not fall by local joule generation of heat at the

time of an element drive, and degradation of generating of a nonluminescent portion (dark spot), an increase, etc. was not avoided.

[0006]

The main cause of these degradation is degradation of the thin film shape of an organic layer. Degradation of this thin film shape is a rise in heat by generation of heat at the time of an element drive, etc., and it is thought that it originates in crystallization (or condensation) of an organic amorphous thin film, etc. It is thought that this heat-resistant lowness originates in the lowness of the glass transition temperature (it omits the following "T_g") of material.

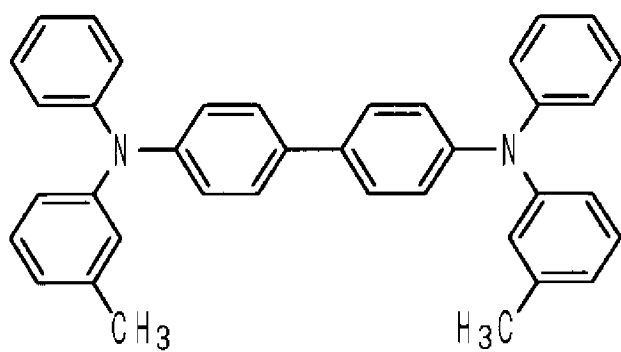
[0007]

About the compound of low molecular weight (for example, about 400 to 600 molecular weight), especially a hole transporting material, there are many things with the low melting point which have high symmetry. The typical aromatic amine compound well used as a hole transporting material of organic electroluminescence devices until now is shown below.

[0008]

[Formula

2]

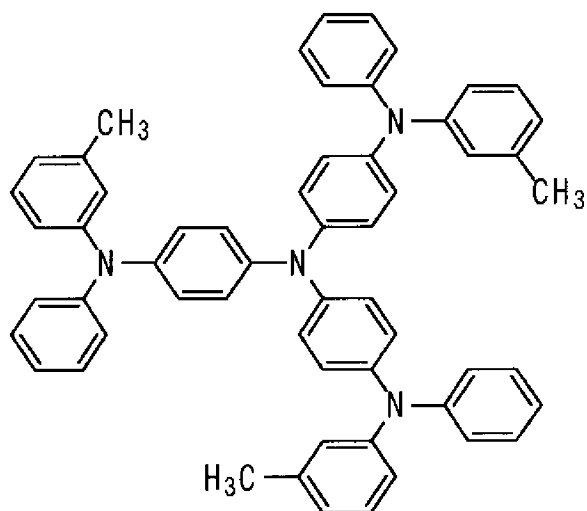


(A - 1)

[0009]

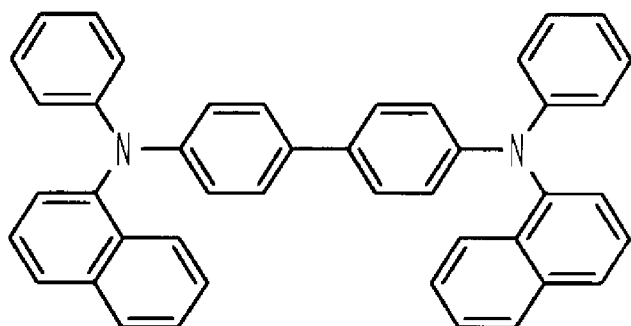
[Formula

3]



(A - 2)

[0010]



(A – 3)

[0011]

T_g of the above-mentioned aromatic diamine (A-1) is 65 **, and T_g of N,N'-diphenyl-N,N'-(3-methylphenyl)-1,1'-biphenyl 4,4'-diamine (usually referred to as TPD) 60 **, T_g of starburst type aromatic triamine (A-2) -- 75 ** (J. -- Phys.Chem. -- 97 volumes) T_g of the 4,4'-bis[N-(1-naphthyl)-N-phenylamino] biphenyl (A-3) which introduced 6240 pages, 1993, and alpha-naphthyl group is 96 ** (the Institute of Electronics, Information and Communication Engineers technical research report, OME95-1995 [54 or]).

[0012]

In the organic amorphous thin film formed from these aromatic amine

compounds, it crystallizes by a rise in heat, or a counter diffusion phenomenon is caused in the two-layer type element structure of an electron hole transporting bed and a luminous layer. And as a result, the deterioration phenomenon to which the luminescent characteristic of an element, especially driver voltage become high appears, and it leads to the fall of a drive life eventually. Since it counts upon the rise in heat in processes, such as vacuum evaporation, baking powder (annealing), wiring, and closure, at the time of element creation also except the time of the drive of an element, the still higher thing of T_g of a hole transporting material is desirable.

[0013]

On the other hand, the trial which uses a polymer material as a hole transporting material of organic electroluminescence devices instead of a low molecular weight compound is also performed, For example, a polyvinyl carbazole (the Institute of Electronics, Information and Communication Engineers technical research report, OME90-1990 [38 or]), Polysilane (Appl.Phys.Lett., 59 volumes, 2760 pages, 1991), polyphosphazene (42nd Society-of-Polymer-Science, Japan annual meeting and I-8-07 and I-8-1993 [08 or]), etc. are reported. However, a polyvinyl carbazole has problems, such as a hole trap etc. of what has 200 **

and high T_g, and endurance is low, The characteristic that the drive life of polysilane is as short as several seconds, ionization potential of polyphosphazene is high, and all endure the conventional aromatic diamine compound by photodegradation etc. is not shown.

[0014]

in addition -- although the electron hole transporting bed which made polycarbonate and polymethylmethacrylate distribute an aromatic diamine compound 30 to 80% of the weight is also examined (Jpn.J.Appl.Phys..) 31-volume L 960 pages, 1992, and a low molecular weight compound act as a plasticizer, T_g is lowered, and it is falling as compared with the case where an element characteristic also uses an aromatic diamine compound alone.

[0015]

Thus, the actual condition is holding the still big problem in the heat resistance of an element, and a drive life towards utilization of organic electroluminescence devices.

[0016]

The heat resistance of organic electroluminescence devices is not improved, but it is a big problem as light sources, such as a back light of a facsimile, a copying

machine, and a liquid crystal display, that a luminescent characteristic is unstable.

It is the characteristic which is not desirable as display devices, such as a flat panel display.

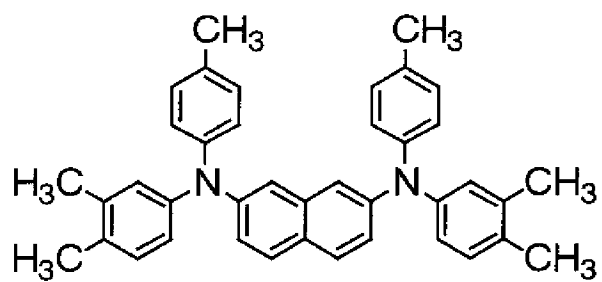
It is serious when considering the application to the display for mount especially.

[0017]

JP,8-87122,A has the statement about the charge transport layer of the organic electroluminescence devices containing the following (A-4) 2,7-diamino naphthalene compounds and an electro photography photo conductor, JP,7-120949,A has the statement about the photosensitive layer of the electro photography photo conductor containing the following (A-5) and a 2,7-diamino naphthalene compound as shown in (A-6).

[0018]

[Formula 5]

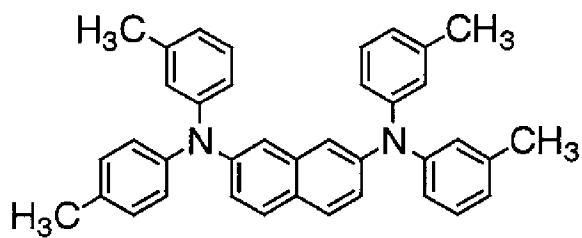


(A-4)

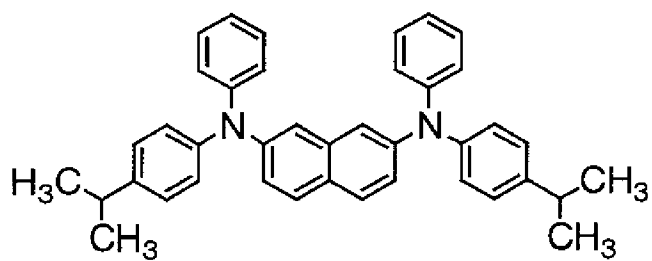
[0019]

[Formula

6]



(A-5)



(A-6)

[0020]

However, it is thought that drive life low [the above-mentioned compound (A-4), (A-5), and (A-6)] Tg as an electron hole transporting bed material of organic electroluminescence devices and sufficient in the organic electroluminescence devices which used this compound for the electron hole transporting bed is not acquired. Since an electrochemical characteristic and ionization potential are large and a diamino naphthalene compound changes with replacement positions of an amino group, the characteristics of organic electroluminescence devices of having used it for the electron hole transporting bed also differ, so that it may mention later. As a result of this invention person's inquiring wholeheartedly, especially as a hole transporting material of organic electroluminescence devices, found out that a substitution product was as useful as 2 and 7-, but. There is no statement about the replacement positions, the electrochemical characteristic, and ionization potential of an amino group in JP,8-87122,A and JP,7-120949,A.

[0021]

Although JP,2-44363,A has the statement about the electro photography photo

conductor containing a diamino naphthalene compound, the compound indicated in this gazette is also considered that T_g is low as an electron hole transporting bed material of organic electroluminescence devices. Since the compound in which the frontier electron orbit has spread greatly as a hole transporting material of organic electroluminescence devices in the aryl group replaced by the nitrogen atom has large hole mobility, it is considered to be useful so that it may mention later, but. Since the alkyl group and aralkyl group of non-conjugate have replaced the diamino naphthalene compound given in JP,2-44363,A by the nitrogen atom, A frontier electron orbit does not spread in the alkyl group and aralkyl group which were replaced by the nitrogen atom, but it is thought that hole mobility is small, and it is not desirable as an electron hole transporting bed material of organic electroluminescence devices. And at least 1 and 5- is a substitution product and, as for all the illustration compounds indicated in this gazette, at least 2 and 7- is considered to be less than a substitution product as an electron hole transporting bed material of organic electroluminescence devices also from the field of an electrochemical characteristic and ionization potential.

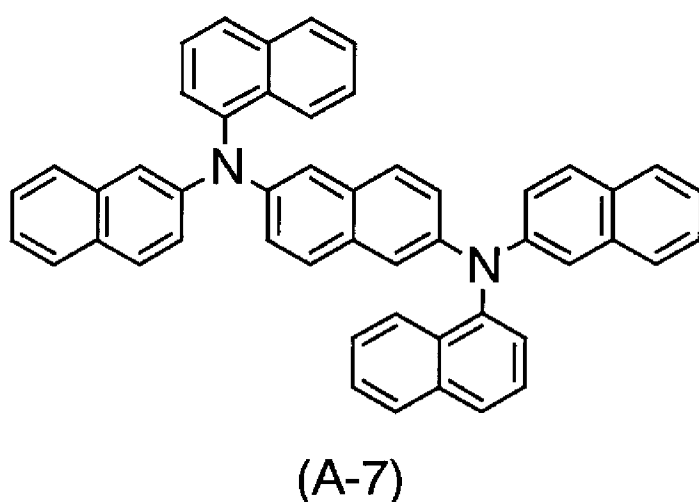
[0022]

In JP,5-234681,A, the following (A-7) 2,6-diamino naphthalene compounds are indicated as an example of the electron hole transporting bed material of organic electroluminescence devices.

[0023]

[Formula

7]



[0024]

However, since at least 2 and 6- is a substitution product, this compound (A-7) is considered for ionization potential to be low and not to be as preferred [as a substitution product] as 2 and 7- as an electron hole transporting bed material of organic electroluminescence devices. Since the electron density of a substitution

product of a central naphthylene group is large, a frontier electron orbit does not spread in the aryl group replaced by the nitrogen atom, but at least 2 and 6- has the tendency for hole mobility to become comparatively small, so that it may mention later. It is thought that this compound has the room for an improvement also in the soluble point to an organic solvent, and has a technical problem in respect of productivity.

[0025]

JP,6-120541,A has the statement about the organic solar cell which contains a diaminoacenaphthene compound as a charge transport color, JP,4-181260,A and JP,2-44364,A have the statement about the electro photography photo conductor containing diaminophenanthrene, and JP,2-44365,A has the statement about the electro photography photo conductor containing diaminoanthracene. However, the compound in which two or more amino groups were replaced by the condensed ring group which these three or more rings condense, Since the electron cloud of the central condensed ring group has spread greatly, a frontier electron orbit does not spread in the aryl group replaced by the nitrogen atom, but hole mobility is considered to be comparatively small and not to be desirable as an electron hole transporting bed

material. The compound in which two or more amino groups were replaced by these condensed ring groups of three or more rings has the low energy level of LUMO (minimum non-occupying molecular orbital), and since it has absorption and a luminous wavelength in a long wavelength field comparatively, it has a problem as an electron hole transporting bed material of organic blue electroluminescence devices especially.

[Patent	documents	1]	JP,8-87122,A
[Patent	documents	2]	JP,7-120949,A
[Patent	documents	3]	JP,2-44363,A
[Patent	documents	4]	JP,5-234681,A
[Patent	documents	5]	JP,6-120541,A
[Patent	documents	6]	JP,4-181260,A
[Patent	documents	7]	JP,2-44364,A
[Patent	documents	8]	JP,2-44365,A

[Nonpatent literature 1] Appl.Phys.Lett., 51 volumes, 913 pages, 1987

[Nonpatent literature 2] J. Phys.Chem., 97 volumes, 6240 pages, 1993

[Nonpatent literature 3] The Institute of Electronics, Information and Communication Engineers technical research report, OME95-1995 [54 or]

[Nonpatent literature 4] The Institute of Electronics, Information and Communication Engineers technical research report, OME90-1990 [38 or]

[Nonpatent literature 5] Appl.Phys.Lett., 59 volumes, 2760 pages, 1991

[Nonpatent literature 6] 42nd Society-of-Polymer-Science,Japan annual meeting and I-8-07 and I-8-1993 [08 or]

[Nonpatent literature 7] Jpn.J.Appl.Phys., 31 L 960 pages, 1992

[Description of the Invention]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]

[0026]

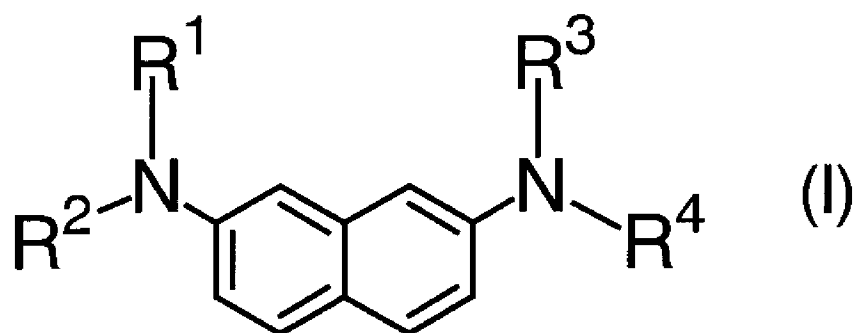
This invention solves the above-mentioned conventional problem, and the low voltage and an efficient drive are possible for it, And it excels in heat resistance and driving stability, and aims at providing the new 2,7-diamino naphthalene compound which can realize the organic electroluminescence devices which can maintain a stable luminescent characteristic over a long time also in an elevated temperature, the charge transporting material using this, an organic electroluminescence-devices material, and organic electroluminescence devices.

[Means for Solving the Problem]

[0027]

A 2,7-diamino naphthalene compound of this invention is expressed with following general formula (I).

[Formula 8]



(Among general formula (I), the aromatic group which may have a substituent is expressed independently respectively, or R¹, R² and R³, and R⁴ join together, and R¹ - R⁴ form respectively the ring which may have a substituent independently.)

However, at least one of the ring which R¹ - R⁴, and R¹ and R² combine and form, and the rings which R³ and R⁴ combine and form expresses the aromatic condensed ring group which three or more rings condense and which may have a substituent.

[0028]

Namely, in current efficiency, luminous efficiency, the drive life characteristic, etc. of organic electroluminescence devices this invention person, For the existence of the aromatic condensed ring group of three or more rings which the new 2,7-diamino naphthalene compound expressed with the above-mentioned general formula (I) has in a molecule as a result of inquiring in order to aim at further improvement, T_g was high and had moderate ionization potential, and electron hole transportation ability was high, found out being improvement in current efficiency and luminous efficiency, and that it was still more effective in improvement in driving stability and a drive life, and reached this invention.

[0029]

The 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with the above-mentioned general formula (I) can obtain an organic thin film which has high T_g and is not crystallized easily from the molecular structure. Ionization potentials and oxidation-reduction potentials of a 2,7-diamino naphthalene compound of this invention are about 4.9-5.3 eV and a 0.6 - 1.0Vvs.S C E grade, and have a value moderate as an electron hole transporting bed material of organic electroluminescence devices, respectively. Therefore, organic

electroluminescence devices using a 2,7-diamino naphthalene compound of this invention as an electron hole transporting bed material show high current efficiency and luminous efficiency.

[0030]

A diamino naphthalene compound (.) in which replacement positions of an amino group differ on the other hand Namely, ionization potential and an oxidation-reduction potential of a 2,6-diamino naphthalene compound, a 1,4-diamino naphthalene compound, and a 1,5-diamino naphthalene compound, comparing with a corresponding 2,7-diamino naphthalene compound -- respectively -- 0.2-0.5 eV, and 0.2-0.5 -- it is [about V] low. For this reason, since exciplex with a molecule used for a luminous layer becomes is easy to be formed when a diamino naphthalene compound in which the above-mentioned substituents differ is used as an electron hole transporting bed material, it becomes what has low current efficiency and luminous efficiency as organic electroluminescence devices.

[0031]

Usually, positive charge of radical cation in which one electron of aromatic diamine oxidized is localized to the central part, and serves as hindrance of

electron hole movement. However, since a 2,7-diamino naphthalene compound of this invention has as a substituent an aromatic condensed ring group which has a bigger electron cloud as compared with a central naphthalene ring, positive charge delocalizes it and it shows high electron hole transportation ability. As compared with a diamino naphthalene compound in which replacement positions of the above-mentioned amino group differ in an interaction of two nitrogen atoms, since it is weak, localization of positive charge in a central naphthylene group does not take place easily, and a 2,7-diamino naphthalene compound of this invention is considered to have higher electron hole transportation ability. For this reason, organic electroluminescence devices using a 2,7-diamino naphthalene compound of this invention as an electron hole transporting bed material are excellent in driving stability.

[0032]

A charge transporting material of this invention contains a 2,7-diamino naphthalene compound of such this invention, and an organic electroluminescence-devices material of this invention contains a 2,7-diamino naphthalene compound of such this invention.

[0033]

Namely, a 2,7-diamino naphthalene compound expressed with said general formula (I) has high Tg, and since charge transport nature is high, it can be used for it conveniently for an electro photography photo conductor, organic electroluminescence devices, an optoelectric transducer, an organic solar cell, an organic rectifier, etc. as a charge transport nature material. By using a 2,7-diamino naphthalene compound expressed with said general formula (I), it excels in heat resistance, organic electroluminescence devices driven to stability for a long period of time (luminescence) are obtained, and it is suitable as an organic electroluminescence-devices material.

[0034]

In organic electroluminescence devices which have a luminous layer between the anode and the negative pole, organic electroluminescence devices of this invention have a layer containing a 2,7-diamino naphthalene compound of such this invention, are excellent in heat resistance and luminous efficiency, and are stable organic electroluminescence devices with a long drive life.

[Effect of the Invention]

[0035]

By according to this invention, electron hole transportation ability being high,

having moderate ionization potential, and using preferably the new 2,7-diamino naphthalene compound excellent in heat resistance, and this 2,7-diamino naphthalene compound for an electron hole transporting bed, Current efficiency and luminous efficiency are high, a low voltage drive is possible, and the organic electroluminescence devices which show driving stability and the stable luminescent characteristic excellent in heat resistance can be obtained.

[Best Mode of Carrying Out the Invention]

[0036]

Although an embodiment of the invention is described in detail below, explanation of the constituent features indicated below is an example (example of representation) of the embodiment of this invention, and, as for this invention, specification is not carried out to these contents.

With the "aromatic condensed ring group" which the "aromatic group" as used in this invention means "an aromatic hydrocarbon group and an aromatic heterocycle group", therefore is introduced into said general formula (I). Only aromatic hydrocarbon rings may be the aromatic condensed ring groups condensed three or more rings, and only an aromatic heterocycle may be an aromatic condensed ring group condensed three or more rings, and aromatic

hydrocarbon rings and an aromatic heterocycle may be the aromatic condensed ring groups condensed three or more rings in total.

[0037]

First, the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with said general formula (I) is explained.

[0038]

$R^1 - R^4$ among said general formula (I) which shows the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention, Although the aromatic group which may have a substituent is expressed independently respectively, or R^1 , R^2 and R^3 , and R^4 join together and the ring which may have a substituent is formed independently respectively, At least one of the ring which $R^1 - R^4$, and R^1 and R^2 combine and form, and the rings which R^3 and R^4 combine and form expresses the aromatic condensed ring group which three or more rings condense and which may have a substituent.

[0039]

As $R^1 - R^4$, specifically, A phenyl group, a naphthyl group, a phenanthryl group, an anthryl group, a pyrenyl group, A fluorenyl group, a benzo fluorenyl group, a fluoranthrenyl group, a perfluoranthrenyl group, A thienyl group, a benzo thienyl

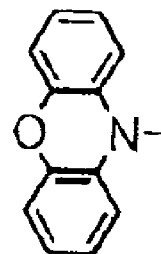
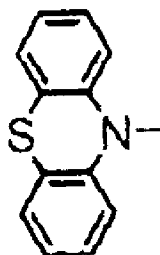
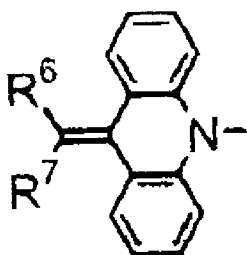
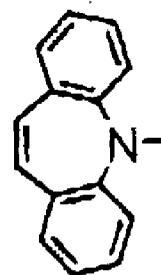
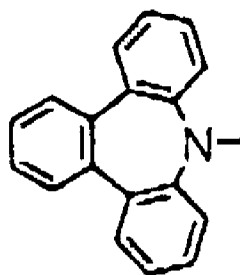
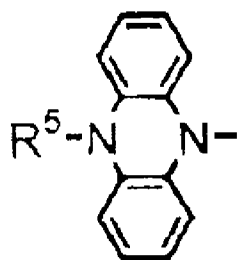
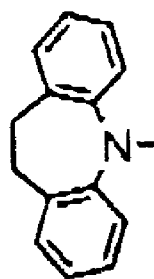
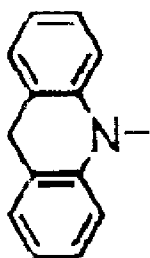
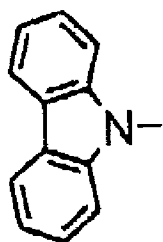
group, a furil group, a benzo furil group, an indolyl group, the basis which consists of two to 5 condensed ring of the monocycles of 5 or 6 membered-rings, such as a carbazolyl group, a benzo carbazolyl group, a pyridyl group, a quinolyl group, and a quinoxalyl group, or these rings -- a phenyl group, a naphthyl group, a phenanthryl group, an anthryl group, and a fluorenyl group are mentioned preferably. Each of these may have a substituent.

[0040]

When R^1 , R^2 , or R^3 and R^4 combines with each other and forms a ring, the desirable example of this ring is shown below, but it is not limited to these.

[Formula

9]



(R⁵, R⁶, and R⁷ show an alkyl group, an aromatic hydrocarbon group, or a hydrogen atom among a formula.)

Each of these may have a substituent.

[0041]

In the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with said general formula (I), At least one is an aromatic condensed ring group which three or more rings in the ring which $R^1 - R^4$, and R^1 and R^2 combine and form, and the ring which R^3 and R^4 combine and form condense and which may have a substituent. Since T_g of a compound goes up by having this aromatic condensed ring group, when it is used for the layer of the organic electroluminescence devices mentioned later, for example, the heat resistance of an element improves and it is desirable.

[0042]

From a point of delocalization of positive charge in a compound, a case where at least one chosen from $R^1 - R^4$ is the aromatic condensed ring group which three or more rings condense and for which it may have a substituent is more preferred.

[0043]

As this aromatic condensed ring group, an anthryl group, a phenanthryl group, a pyrenyl group, A five-membered ring - six membered-rings, such as a fluorenyl group and a pyrenyl group, preferably three or more rings Four or more rings, a five-membered ring - six membered-rings, such as an aromatic hydrocarbon

group which usually consists of a condensed ring of five or less rings, an acridinyl group, a phenanthroliziny group, a benzo carbazolyl group, -- four or more rings, three or more rings of aromatic heterocycle groups which usually consist of a condensed ring of five or less rings, etc. are mentioned preferably.

[0044]

Also in this condensed ring, aromatic hydrocarbon rings condense a more desirable thing and especially a desirable thing is a phenan tolyl group. By having a phenan tolyl group, the continuation drive characteristic of organic electroluminescence devices which have a layer containing this compound improves by leaps and bounds.

[0045]

As a position which this aromatic condensed ring group combines, although it may be any of $R^1 - R^4$, especially a case where it has one at a time respectively in R^1 or R^2 , and R^3 or R^4 is preferred.

[0046]

By making $-NR^1R^2$ and $-NR^3R^4$ into a different basis, although a composition top has a preferred compound with high symmetry with equal $-NR^1R^2$ and $-NR^3R^4$, There is an advantage that the amorphism nature of a thin film containing this

compound increases, and a compound such for un-is also preferred.

[0047]

A ring which an aromatic group of $R^1 - R^4$, R^1 , R^2 or R^3 , and R^4 combine and form, And as a substituent which the above-mentioned aromatic condensed ring group may have, Although there is no restriction in particular, for example An alkyl group of the carbon numbers 1-10, such as a methyl group, an ethyl group, t-butyl group, and a cyclohexyl group, An alkynyl group of the carbon numbers 2-11, such as an alkenyl group of the carbon numbers 2-11, such as a vinyl group, and an ethynyl group, An alkoxy group alkoxy group of the carbon numbers 2-11, such as aralkyl groups, such as benzyl and a phenethyl group, a methoxy group, and an ethoxy basis, Aryloxy groups, such as a phenoxy group, a dimethylamino group, a diisopropylamino group, dialkylamino group [, such as an ethyl methylamino group,]; -- alkyl arylamino group [, such as a methylphenylamino group,]; -- a diphenylamino group. Diaryl amino groups, such as a ditolylamino group, a phenylnaphthyl amino group, and N-carbazolyl group; An acyl group of the carbon numbers 2-11, such as an acetyl group, An alkoxycarbonyl group of the carbon numbers 2-11 of a methoxycarbonyl group, an ethoxycarbonyl group, etc.; A phenyl group, a naphthyl group, a phenan tolyl

group, an anthryl group, a pyrenyl group, a fluorenyl group, Aromatic hydrocarbon groups, such as a benzo fluorenyl group; A thienyl group, a benzo thienyl group, Aromatic heterocycle groups, such as a furil group, a benzo furil group, an indolyl group, a carbazolyl group, a benzo carbazolyl group, a pyridyl group, a quinolyl group, and a quinoxalyl group, and an one or more-***** substituent may be mentioned, and these may be replaced further. As further substituent, although there is no restriction in particular, an above-mentioned alkyl group, an aromatic hydrocarbon group, etc. are mentioned, for example. These substituents may be introduced two or more on rings, such as $R^1 - R^4$, and are set in that case, arbitrarily, two or more substituents may be mutually the same, or a position of a substituent may differ in them.

[0048]

As a ring which an aromatic group, R^1 , R^2 or R^3 in $R^1 - R^4$, and R^4 combine and form, and a substituent which said aromatic condensed ring group ** may have, The desirable above is a methyl group, a phenyl group, a tolyl group, t-butyl group, a biphenyl group, and an ethyl group.

[0049]

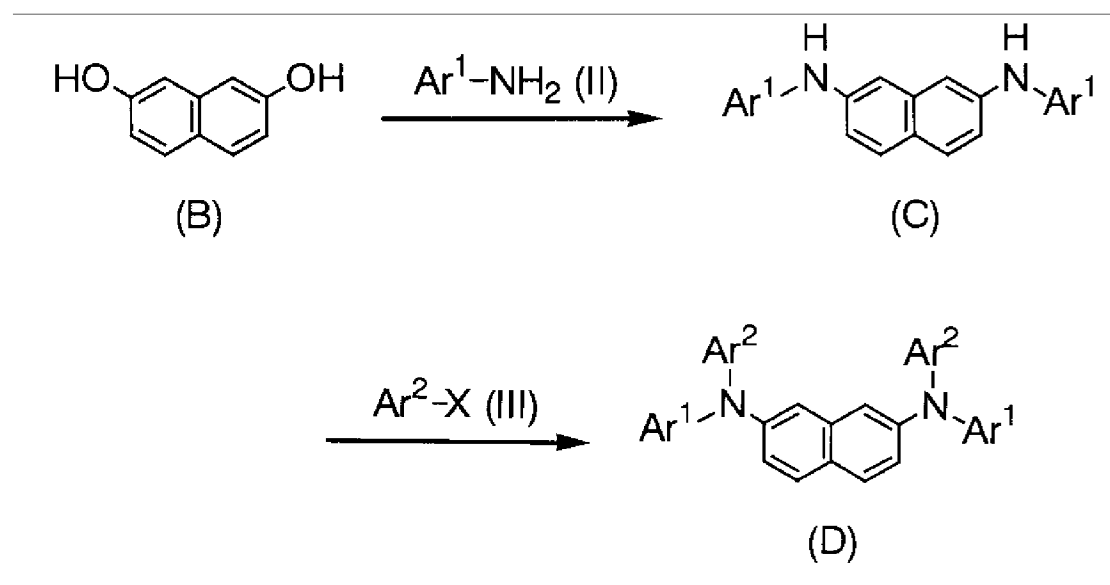
Among such 2,7-diamino naphthalene compounds of this invention, an object

compound uses 2,7-dihydroxynaphthalene (B) as a starting material, for example, and is compounded simple as follows.

[0050]

[Formula

10]



[0051]

That is, dehydration of the aromatic amine first expressed with 2,7-dihydroxynaphthalene (B) and general formula (II) is carried out by the mole ratio of 1:2. The 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with a general formula (D) is obtained by making the intermediate expressed

with the obtained general formula (C) react to the aromatic halogenide expressed with general formula (III). Ar¹ and Ar² express respectively the aromatic group which may have a substituent independently among the above-mentioned general formula (II), (C), (III), and (D). However, the method of one at least expresses the aromatic condensed ring group which may have a substituent of Ar¹ and the Ar² which three or more rings condense. X is halogen atoms, such as iodine, bromine, and chlorine.

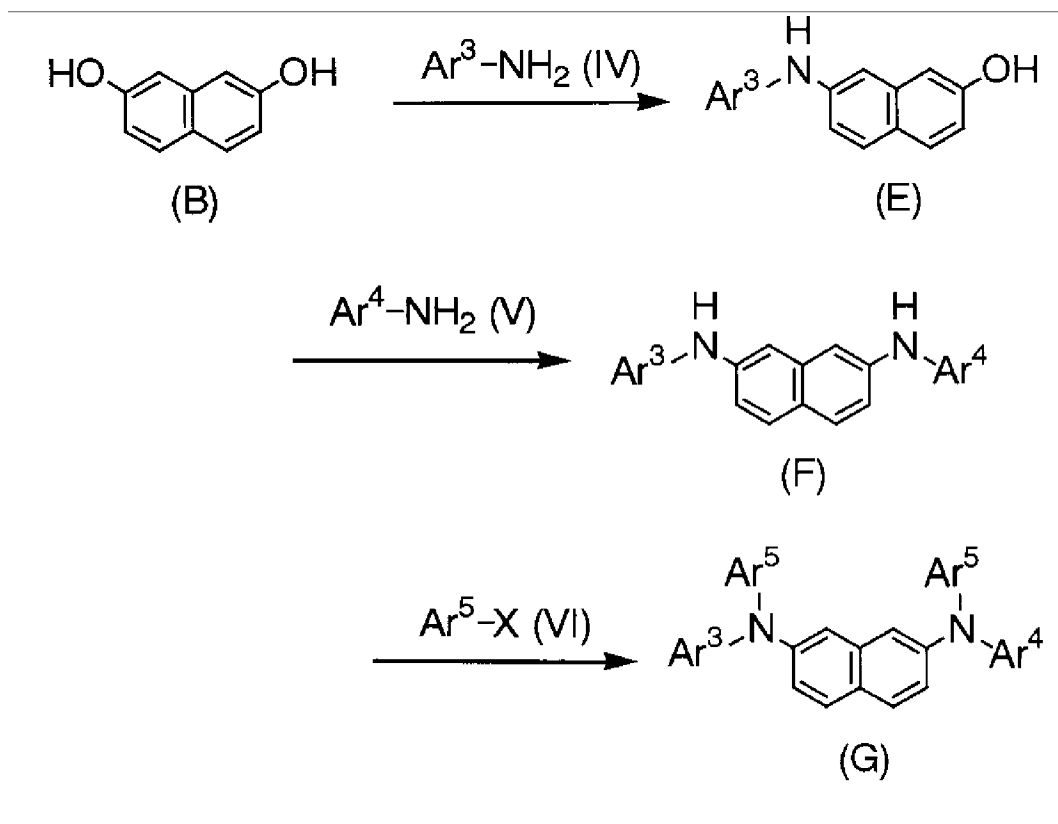
[0052]

If it is a 2,7-diamino naphthalene compound of an asymmetrical type, it is compoundable by making these react to 2,7-dihydroxynaphthalene (B) gradually using two kinds of aromatic amines, as it is shown below.

[0053]

[Formula

11]



[0054]

That is, dehydration of the aromatic amine which are 2,7-dihydroxynaphthalene (B) and general formula (IV), and is expressed first is carried out by the mole ratio of 1:1. Then, dehydration of the aromatic amine expressed with the intermediate expressed with the obtained general formula (E) and general formula (V) is carried out by the mole ratio of 1:1. The 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with a general formula (G) is obtained by

making the intermediate expressed with the obtained general formula (F) react to the aromatic halogenide expressed with general formula (VI). $Ar^3 - Ar^5$ express respectively the aromatic group which may have a substituent independently among general formula (IV) - (VI), (E), (F), and (G). However, at least one of $Ar^3 - Ar^5$ expresses the aromatic condensed ring group which three or more rings condense and which may have a substituent. X is halogen atoms, such as iodine, bromine, and chlorine.

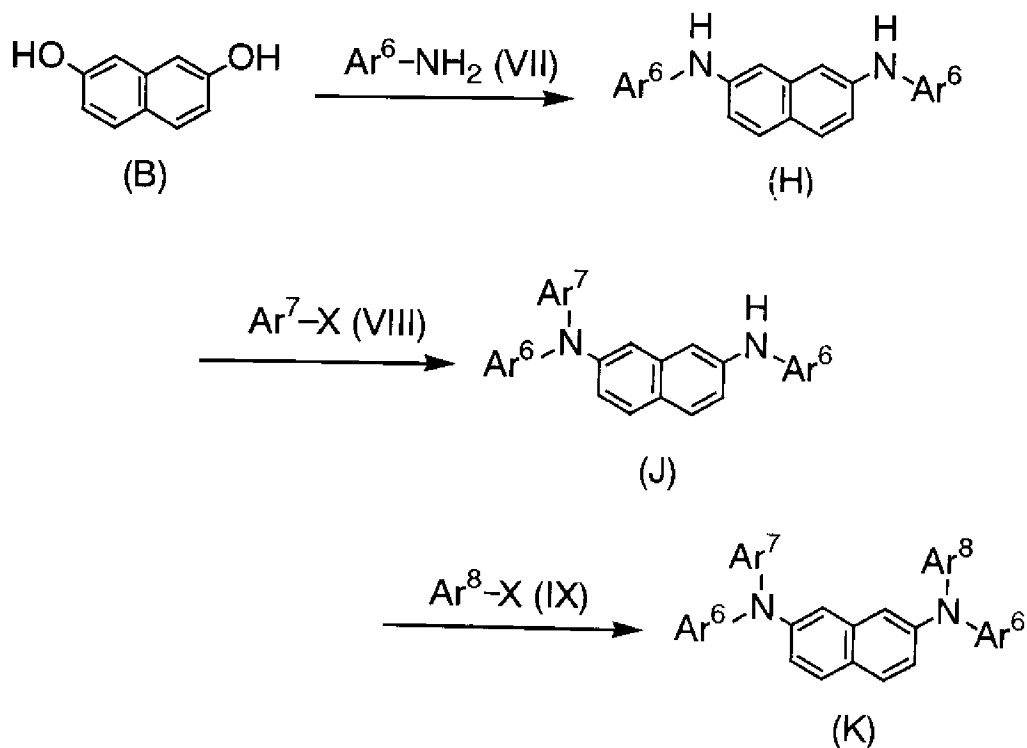
[0055]

An un-object 2,7-diamino naphthalene compound is also compoundable by making these react gradually again using two kinds of aromatic halogenides as follows.

[0056]

[Formula

12]



[0057]

That is, dehydration of the aromatic amine expressed with 2,7-dihydroxynaphthalene (B) and general formula (VII) is carried out by the mole ratio of 1:2. The intermediate expressed with the obtained general formula (H) is made to react to the aromatic halogenide expressed with general formula (VIII) by the mole ratio of 1:1. The 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with a general formula (K) is obtained by making the

intermediate expressed with the obtained general formula (J) react to the aromatic halogenide expressed with general formula (IX) by the mole ratio of 1:1.

Ar⁶ - Ar⁸ express respectively the aromatic group which may have a substituent independently among general formula (VII) - (IX), (H), (J), and (K). However, at least one of Ar⁶ - Ar⁸ expresses the aromatic condensed ring group which three or more rings condense and which may have a substituent. X is halogen atoms, such as iodine, bromine, and chlorine.

[0058]

If it is the 2,7-diamino naphthalene compound which R¹, R², or R³ and R⁴ joins together, and forms a ring in said general formula (I), It is obtained by performing a condensation reaction or making annular secondary amine react to 2,7-dihydroxynaphthalene (B) about a substituent on an amine group of a 2,7-diamino naphthalene compound manufactured as mentioned above.

[0059]

A minimum of a molecular weight of a 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with said general formula (I) is usually about 500 preferably about 450, and a maximum is usually about 1000 preferably about 1500. If there is a possibility that T_g may fall when less than this lower limit, and

a maximum is exceeded, membrane formation by vacuum evaporation may become difficult.

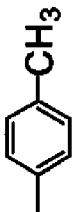
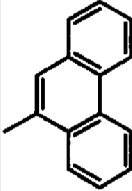
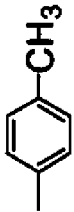
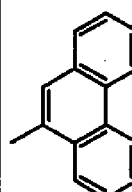
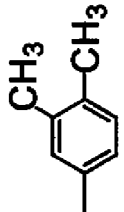
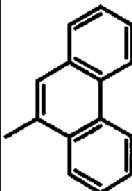
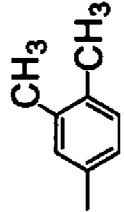
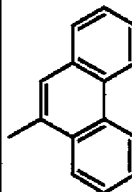
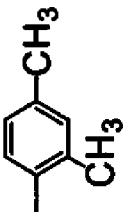
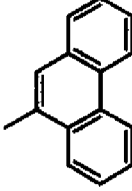
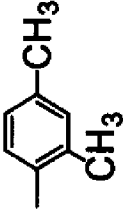
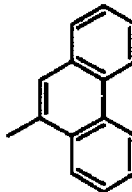
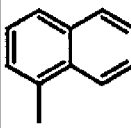
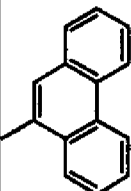
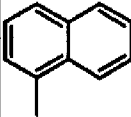
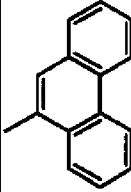
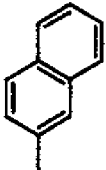
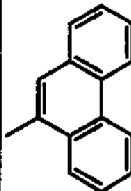
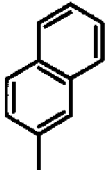
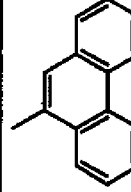
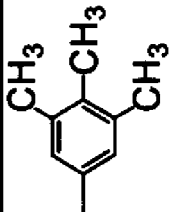
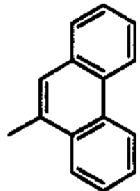
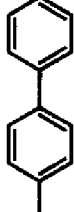
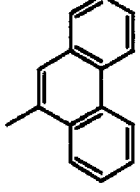
[0060]

Although a desirable example of a 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with said general formula (I) is shown in following table-1 (No.1-No.94), it does not limit to these.

[0061]

[Table 1]

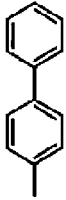
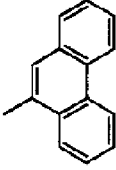
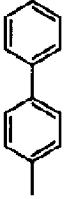
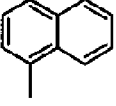
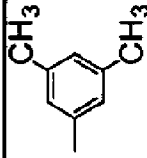
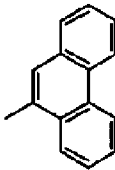
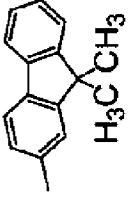
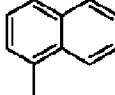
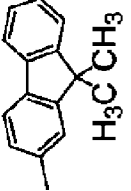
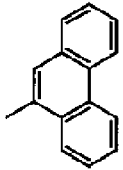
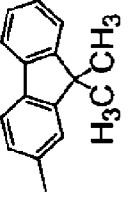
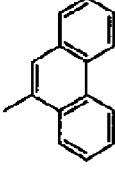
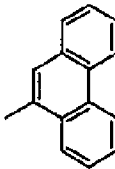
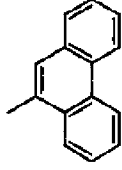
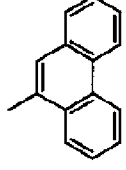
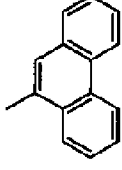
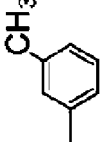
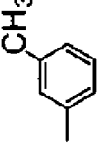
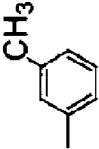
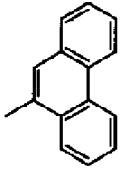
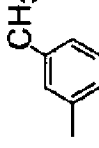
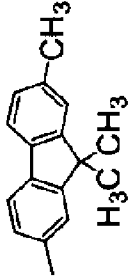
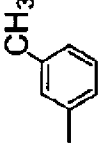
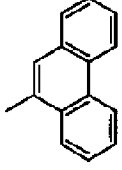
表一-1

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
1				
2				
3				
4				
5				
6				

[0062]

[Table

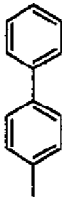
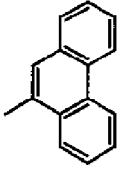
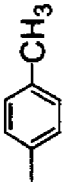
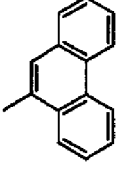
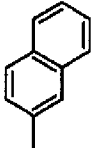
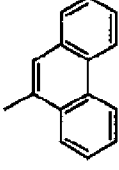

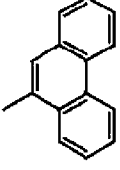
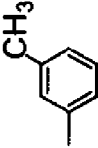
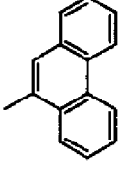
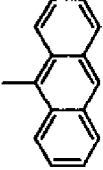
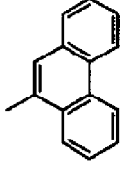
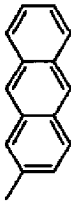
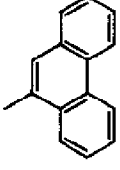
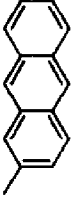
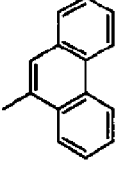
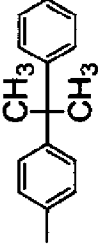
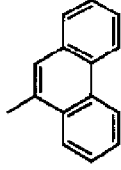
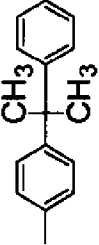
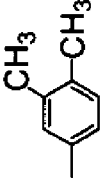
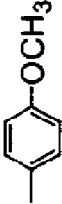
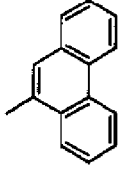
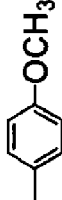
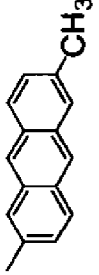
2]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
7				
8				
9				
10				
11				
12				

[0063]

[Table

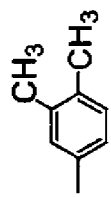
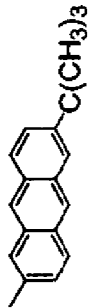
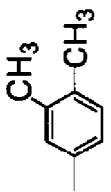
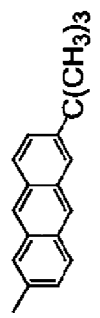
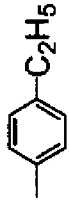
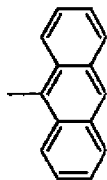
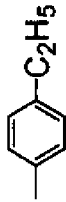
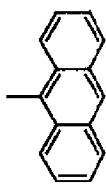
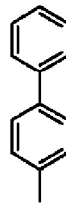
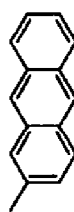
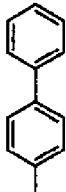
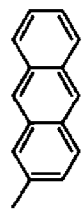
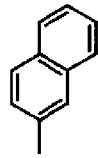
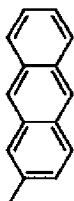
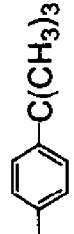
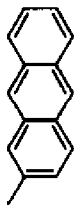
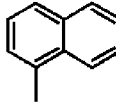
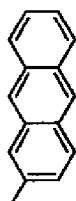
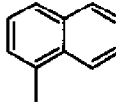
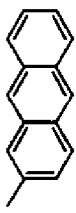
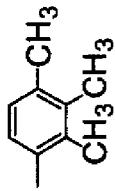
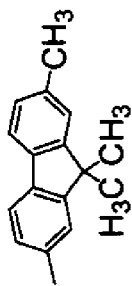
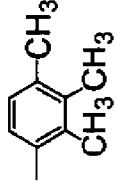
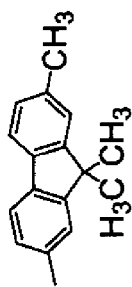
3]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
13				
14				
15				
16				
17				
18				

[0064]

[Table

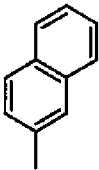
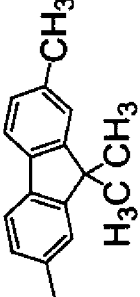
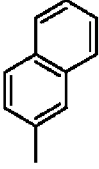

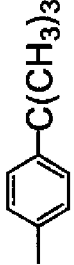

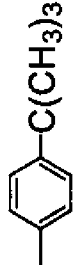
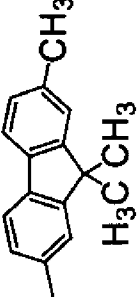
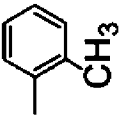
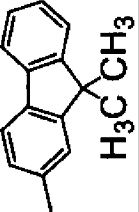
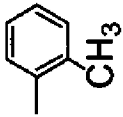
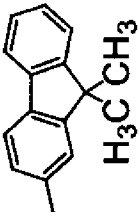
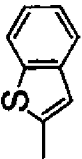
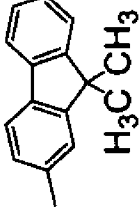
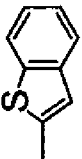
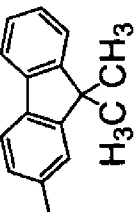
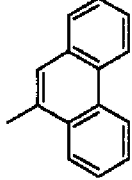
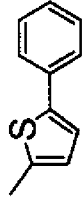
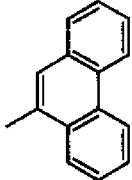
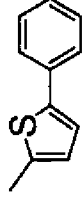
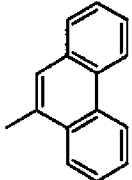
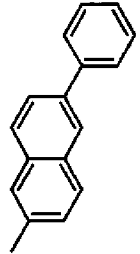
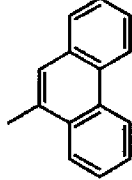
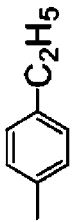
4]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
19				
20				
21				
22				
23				
24				

[0065]

[Table

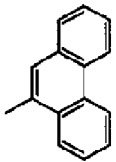
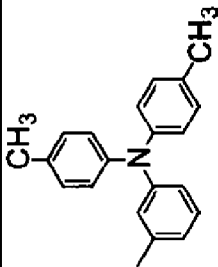
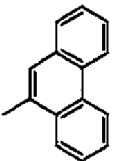
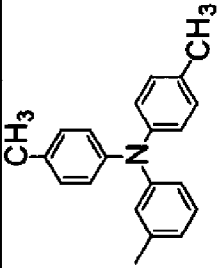
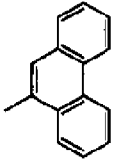
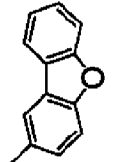
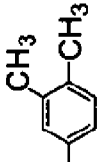
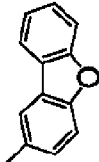

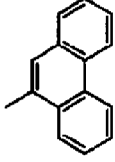
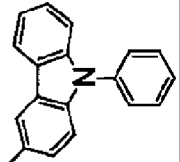
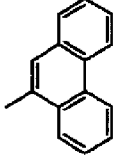
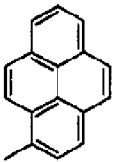
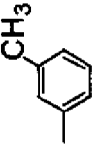
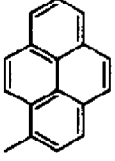
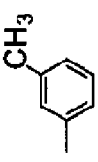
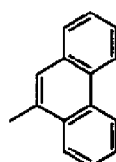
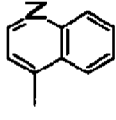
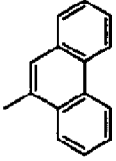
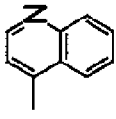
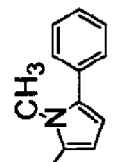
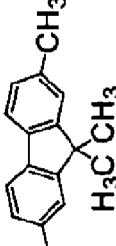
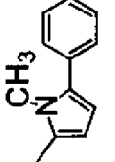
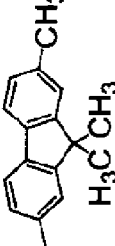
5]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
25				
26				
27				
28				
29				
30				

[0066]

[Table

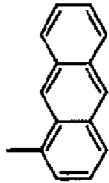
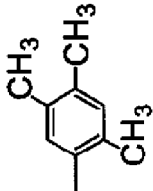
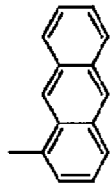
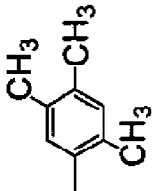
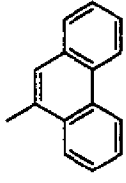
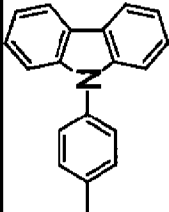
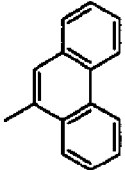
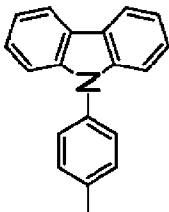

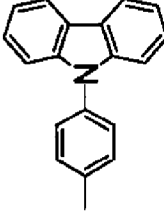

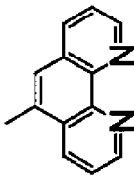
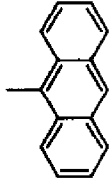
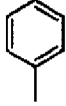
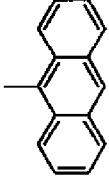
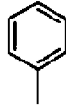
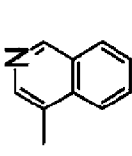
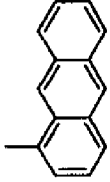
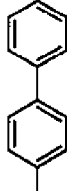
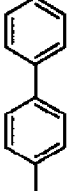
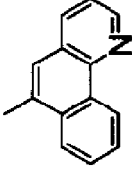
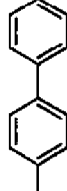
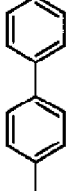
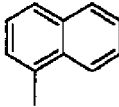
6]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
31				
32				
33				
34				
35				
36				

[0067]

[Table

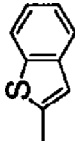
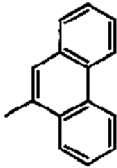

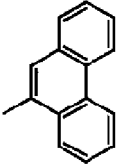
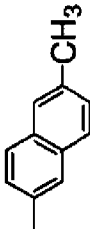
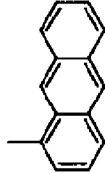
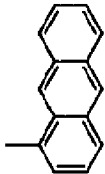
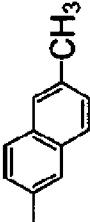

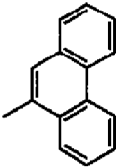
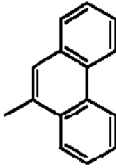

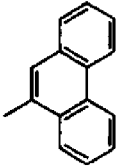
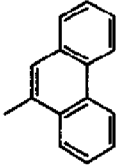
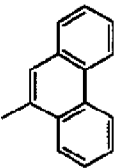
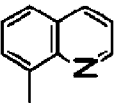
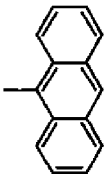
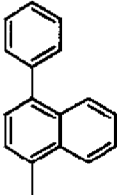


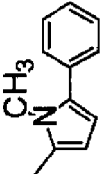
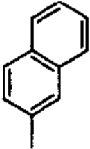
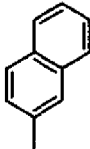
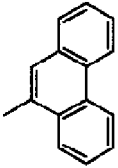
7]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
37				
38				
39				
40				
41				
42				

[0068]

[Table

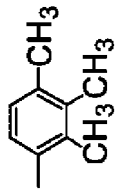
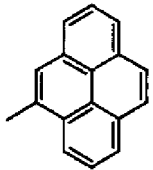
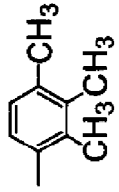
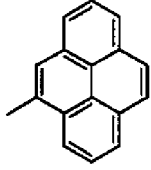
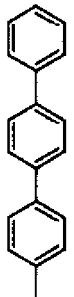
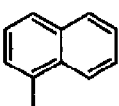
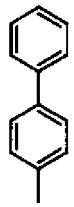
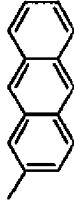
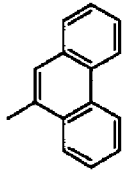
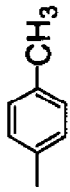
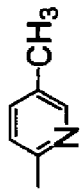
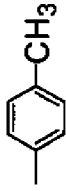

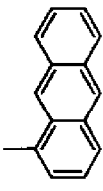
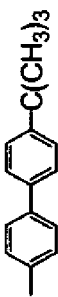
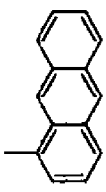
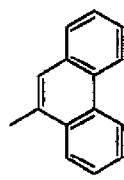

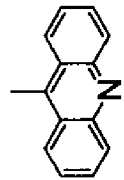
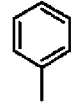
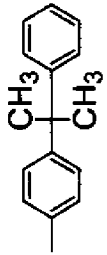
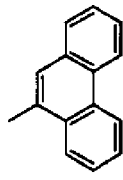
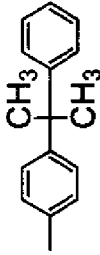
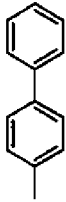
8]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
43				
44				
45				
46				
47				
48				

[0069]

[Table

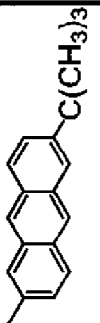

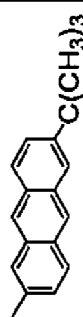

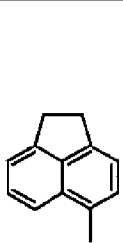
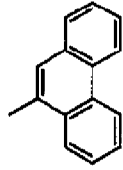
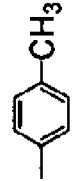
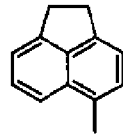
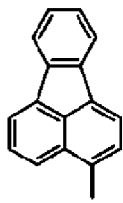
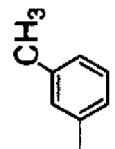
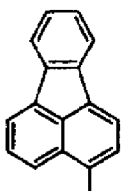
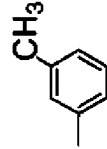

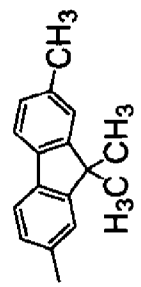
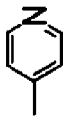

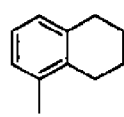
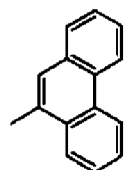
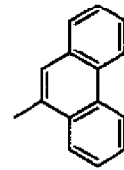
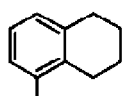
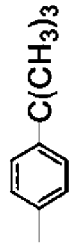
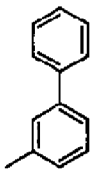

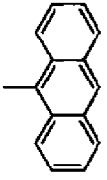
9]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
49				
50				
51				
52				
53				
54				

[0070]

[Table

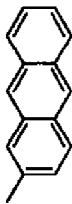
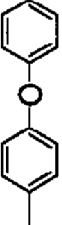
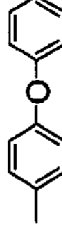
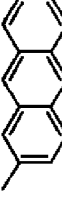
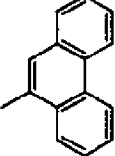

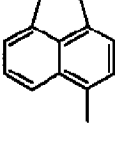

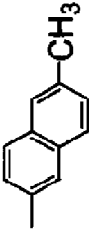
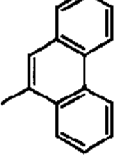
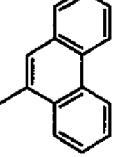
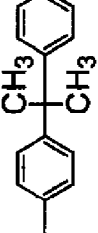
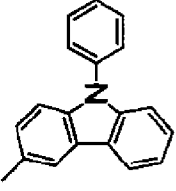
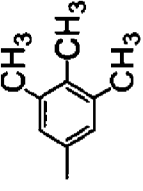
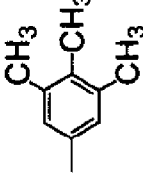
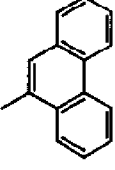
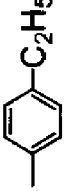
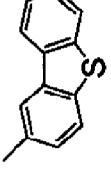
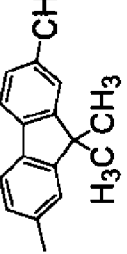
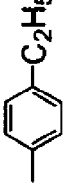
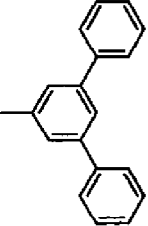
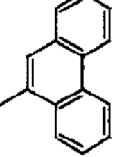
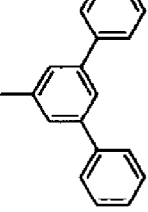
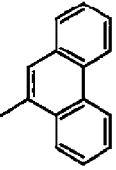
10]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
55				
56				
57				
58				
59				
60				

[0071]

[Table

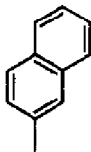
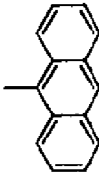
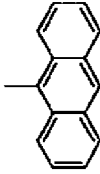

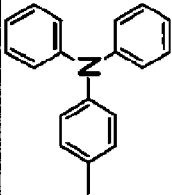
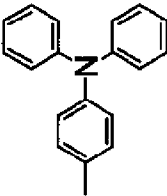
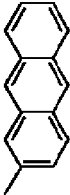
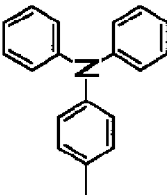


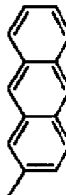
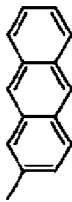
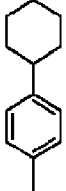
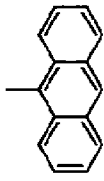
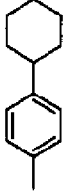
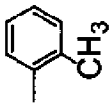
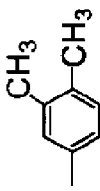
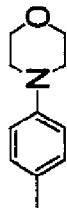
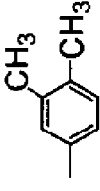
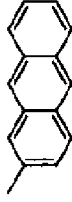
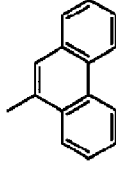
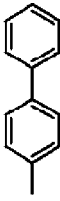
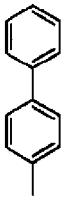
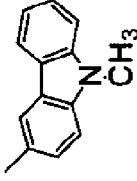
11]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
61				
62				
63				
64				
65				
66				

[0072]

[Table

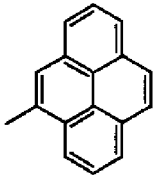

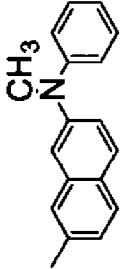

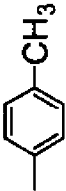
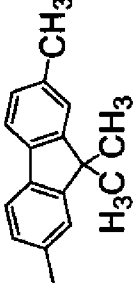
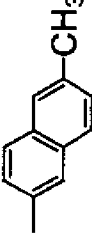
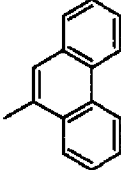
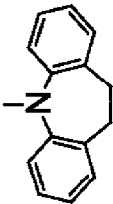
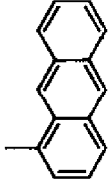
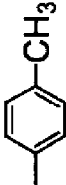
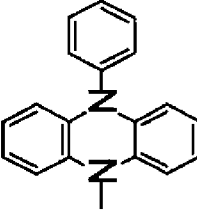
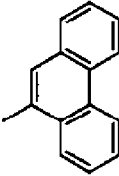
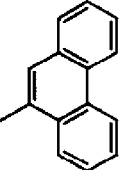
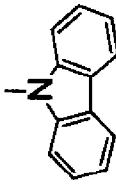
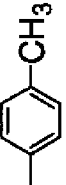
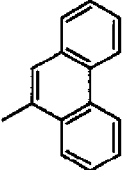
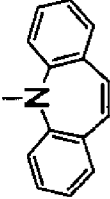
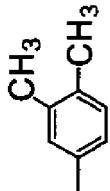
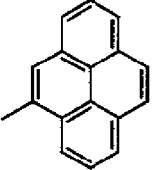
12]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
67				
68				
69				
70				
71				
72				

[0073]

[Table

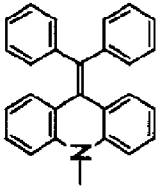
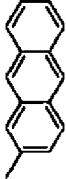
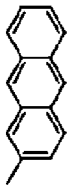
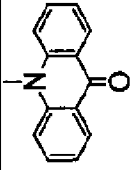
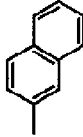
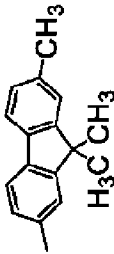
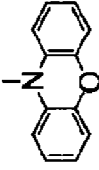
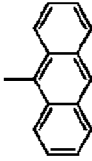
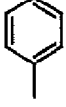
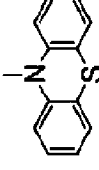

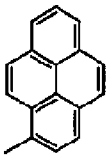
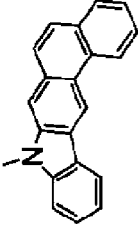
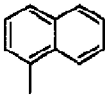
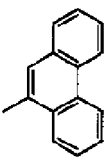
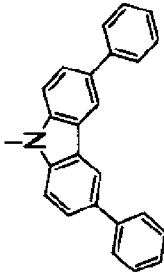

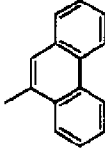
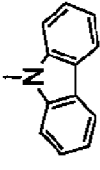
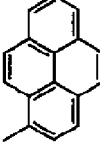

13]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
73				
74				
75				
76				
77				
78				

[0074]

[Table

14]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
79				
80				
81				
82				
83				
84				
85				

[0075]

[Table

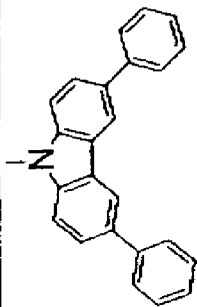
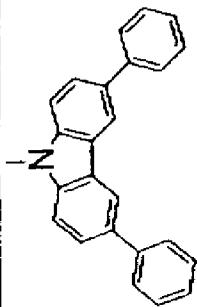
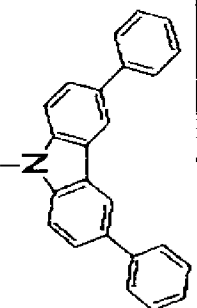
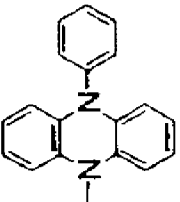
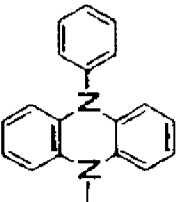

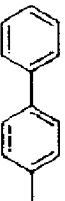
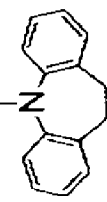
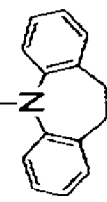


15]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
86				
87				
88				
89				
90				
91				

[0076]

[Table

16]

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
92				
93				
94				

[0077]

Since it has high charge transport nature, the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with said general formula (I) can be used conveniently for an electro photography photo conductor, organic electroluminescence devices, an optoelectric transducer, an organic solar cell, an organic rectifier, etc. as a charge transport nature material. Since it excels especially in electron hole transportability, it is suitable as a compound of electron transport property.

[0078]

Since the organic electroluminescence devices which are excellent in heat resistance and are driven to stability for a long period of time by using the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with said general formula (I) (luminescence) are obtained, it is suitable also as an organic electroluminescence-devices material.

[0079]

Next, the organic electroluminescence devices of this invention constituted using

the 2,7-diamino naphthalene compound of such this invention are explained.

The organic electroluminescence devices of this invention have a luminous layer between the anode and the negative pole, and have a layer containing the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with said general formula (I).

In the organic electroluminescence devices of this invention, although this 2,7-diamino naphthalene compound may be contained in which layer in organic electroluminescence devices, it is preferably contained in the layer of the electron hole transportability between the anode and a luminous layer.

[0080]

In the organic electroluminescence devices of this invention, said two or more sorts of 2,7-diamino naphthalene compounds may contain in the same layer, and this 2,7-diamino naphthalene compound may contain in two or more layers.

In such a case, the 2,7-diamino naphthalene compound contained in these layers may be the same, or may differ.

[0081]

In the organic electroluminescence devices of this invention, in the case of one, the layer between anode-luminous layers calls this an "electron hole transporting

bed", in the case of two or more, an "anode buffer layer" and the other layer are named generically, and they call the layer which is in contact with the anode an "electron hole transporting bed."

[0082]

The embodiment of the organic electroluminescence devices of this invention is described to an example for the case where the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with said general formula (I) with reference to drawings below is contained in an electron hole transporting bed, in detail.

[0083]

Although drawing 1 - drawing 3 are the sectional views showing typically the constructional example of the organic electroluminescence devices of this invention, the organic electroluminescence devices of this invention are not limited to the thing of a graphic display at all. in drawing 1 - drawing 3 -- 1 -- a substrate and 2 -- the anode and 3, as for an anode buffer layer and 4, an electron hole transporting bed and 5 express a luminous layer, 6 expresses an electron transport layer, and 7 expresses the negative pole respectively.

[0084]

The substrate 1 serves as a base material of organic electroluminescence devices, and the board of quartz or glass, a metal plate, a metallic foil and a plastic film, a sheet, etc. are used. The board of transparent synthetic resins, such as a glass plate, polyester, polymethacrylate, polycarbonate, polysulfone, is especially preferred. To use a synthetic resin base, it is necessary to care about gas barrier property. Since organic electroluminescence devices may deteriorate by the open air which passed the substrate when the gas barrier property of a substrate is too small, it is not desirable. For this reason, when using a synthetic resin base, the method of providing precise silicon oxide etc. at least in that one side, and securing gas barrier property is also one of the desirable methods.

[0085]

The anode 2 is formed on the substrate 1. The anode 2 plays the role of the hole injection to the electron hole transporting bed 4. This anode 2 usually Aluminum, gold, silver, nickel, palladium, It is constituted by conductive polymers, such as halogenation metal, such as metallic oxides, such as an oxide of metal, such as platinum, indium, and/or tin, and copper iodide, carbon black or poly (3-methylthiophene), polypyrrole, and poly aniline, etc. The anode 2 is usually

formed by sputtering process, a vacuum deposition method, etc. in many cases. When forming the anode 2 using particles, such as metal particles, such as silver, and copper iodide, carbon black, a conductive metal oxide particle, conductive polymer impalpable powder, etc., the anode 2 can also be formed by distributing in a suitable binder resin solution and applying on the substrate 1. When forming the anode 2 using a conductive polymer, a thin film can be directly formed on the substrate 1 by electrolytic polymerization, or on the substrate 1, a conductive polymer solution can be applied and the anode 2 can also be formed (Appl.Phys.Lett., 60 volumes, 2711 pages, 1992). The anode 2 may have the laminated structure formed by laminating the layer which consists of a different material.

[0086]

The thickness of the anode 2 changes with transparency to need. When transparency is needed, it is desirable to usually make transmissivity of visible light into not less than 80% preferably not less than 60%, 5 nm of minimums of the thickness of the anode 2 are usually 10 nm preferably in this case, and 1000 nm of maximums are usually 500 nm preferably. When it may be opaque, the thickness of the anode 2 is arbitrary, for example, may be formed with metal etc.

and may serve as the substrate 1.

[0087]

In the organic electroluminescence devices of drawing 1, the electron hole transporting bed 4 is formed on the anode 2.

As conditions required of the material of the electron hole transporting bed 4, the hole-injection efficiency from the anode 2 is high, and it is possible to convey the poured-in electron hole efficiently, and it is required to be the material which can deliver an electron hole to the luminous layer 5 efficiently. For that purpose, hole mobility is large and it has moderate ionization potential, and to the light of visible light, transparency is high, the stable amorphous film which is not crystallized still more easily can be formed, and it is required that it should be hard to generate the impurity used as a trap at the time of manufacture and use.

Therefore, the material which has about 4.9-5.3-eV ionization potential, and absorption of a light range is small, and a frontier electron orbit delocalizes widely, and has the still higher glass transition temperature T_g is preferred.

[0088]

In [in order that the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with said general formula (I) may fully fulfill these conditions] the

organic electroluminescence devices of this invention, It is preferred to use the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention as a stratification material of the hole injection and transportability established between the anode 2 and the luminous layer 5 mentioned later.

[0089]

Ionization potential is defined by energy required to emit the electrons in the HOMO (highest occupied molecular orbital) level of a substance to vacuum level, and even if it amends the oxidation potential which direct measurement was carried out by photoelectron spectroscopy, or was measured electrochemically to a reference electrode, it is searched for. When a saturated calomel electrode (S C E) is used as a reference electrode, for example in the case of the latter method,

Ionization potential = oxidation potential (vs.S C E) of +4.3 eV

It is come out and expressed ("Molecular Semiconductors", Springer-Verlag, 1985, 98 pages).

[0090]

The electron hole transporting bed 4 containing the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention expressed with general formula (I) is formed on said

anode 2 by the applying method or a vacuum deposition method. When based on the applying method, the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention is dissolved in a solvent, What is necessary is just to carry out the stratification on the anode 2 by the publicly known wet forming-membranes method using the coating solution which added and prepared additive agents which furthermore do not become a hole trap as occasion demands at this, such as binder resin and a spreading nature improving agent. Here, as a wet forming-membranes method, various print processes, such as the usual applying methods, such as a spray method, print processes, a spin coat method, a dip coating method, and the die coat method, the ink jet method, screen printing, etc. are mentioned.

[0091]

Polycarbonate, polyarylate, polyester, etc. are used as binder resin. As for binder resin, since hole mobility will fall if there are many amounts of binder resin occupied to the electron hole transporting bed 4, it is preferred to use so that the content in the electron hole transporting bed 4 may be 50 or less % of the weight.

[0092]

When based on a vacuum deposition method, the crucible which accommodated

the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention is installed in a vacuum housing, and the anode 2 is made to counter a crucible and is arranged. After exhausting the inside of this vacuum housing even to a 10^{-4} Pa grade with a vacuum pump, a crucible is heated, a 2,7-diamino naphthalene compound is evaporated, and the generated steam is made to vapor-deposit on the anode 2.

[0093]

The electron hole transporting bed 4 may be formed using one sort of the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention independently, and may mix and form two or more sorts if needed. Aromatic amines other than the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention, etc. may be contained in the range which does not spoil the performance of the element of this invention.

In the electron hole transporting bed 4, as an acceptor, further The metal complex and/or metal salt (JP,4-320484,A) of aromatic carboxylic acid, A benzophenone derivative and a thio benzophenone derivative (JP,5-295361,A), and fullerene (JP,5-331458,A) may be doped by 10^{-3} -10 % of the weight concentration, and the electron hole as a free career may be made to generate. If it does in this way, generally driver voltage can be made low. Unless the outstanding characteristic which the 2,7-diamino naphthalene compound of this

invention has is spoiled, a publicly known hole transporting material may be used together to this electron hole transporting bed 4.

[0094]

As this publicly known electron hole transportability material, for example 1,1-bis(4-di-p-tolylamino phenyl)cyclohexane, The aromatic amine which two or more fused aromatic rings replaced by the nitrogen atom including two or more tertiary amine represented with 4,4'-bis[N-(1-naphthyl)-N-phenylamino] biphenyl (JP,5-234681,A), The aromatic triamine which has starburst structure with the derivative of triphenylbenzene (U.S. Pat. No. 4,923,774), N,N'-diphenyl-N,N'-bis(3-methylphenyl)biphenyl 4,4'-diamine etc., The compound which the aromatic diamino group replaced by the pyrenyl group, the aromatic diamine which has styryl structure (JP,4-290851,A), What connected the aromatic tertiary amine unit with the thiophene group (JP,4-304466,A), Starburst type aromatic triamine (JP,4-308688,A), What [connected tertiary amine by the fluorene group] (JP,5-25473,A), triamine compound (JP,5-239455,A), screw dipyrityl aminobiphenyl, N, N, and N-triphenylamine derivative (JP,6-1972,A), The aromatic diamine which has phenoxazine structure (JP,7-138562,A), A diaminophenyl phenanthridine derivative

(JP,7-252474,A), a silazane compound (U.S. Pat. No. 4,950,950 gazette), a silanamine derivative (JP,6-49079,A), a phosphamine derivative (JP,6-25659,A), etc. are mentioned. These compounds may be used independently, if needed, may mix two or more sorts and may be used.

[0095]

As for the content of the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention in the electron hole transporting bed 4, it is preferred that it is 50 % of the weight or more among this layer, and it is more preferred that it is 80 % of the weight or more.

[0096]

The thickness of the electron hole transporting bed 4 is not less than 10 nm preferably, and is usually 100 nm or less preferably 300 nm or less not less than 5 nm. Thus, in order to form a thin film uniformly, generally a vacuum deposition method is used well.

[0097]

In the element shown in drawing 1, the luminous layer 5 is formed on the electron hole transporting bed 4. In inter-electrode [which was able to give the electric field], the luminous layer 5 is formed considering the luminescent

compound in which it is excited by the recombination of the electron hole which is poured in from the anode 2 and moves the electron hole transporting bed 4, and the electron which is poured in from the negative pole 7 and moves the electron transport layer 6, and strong luminescence (fluorescence or phosphorescence) is shown as the main ingredients. This luminescent compound needs to be what has stable thin film shape, can show a high quantum yield (luminescence) according to a solid state, and can convey an electron hole and/or an electron efficiently. It is electrochemically and chemically stable and it is required that the impurity used as a trap should be a compound which is hard to generate at the time of manufacture and use.

[0098]

As a compound which forms the luminous layer which fulfills such conditions and shows fluorescence, Complex compounds, such as an aluminium complex of 8-hydroxyquinoline (JP,59-194393,A), The complex compound of 10-hydroxybenzo[h] quinoline (JP,6-322362,A), A screw styryl benzene derivative (JP,1-245087,A, 2-222484 gazette), A screw styryl arylene derivative (JP,2-247278,A), the metal complex (JP,8-315983,A) of benzothiazole (2-hydroxyphenyl), a silole derivative, etc. are mentioned. The aromatic amine

system compound which has luminescence among the above-mentioned electron hole transportability materials can also be used as a luminous layer material. Such luminous layer materials are usually laminated on the electron hole transporting bed 4 by a vacuum deposition method.

[0099]

While raising the luminous efficiency of an element, it is the purpose of changing the luminescent color, and doping fluorochromes for laser, such as a coumarin, by using the aluminium complex of 8-hydroxyquinoline as a host material, for example (J. Appl.Phys., 65 volumes, 3610 pages, 1989) etc. is performed. This doping technique can be applied also to the luminous layer 5, and various kinds of fluorochromes can be used for it as a charge of dope material besides a coumarin. As a fluorochrome which gives blue light, perylene, pyrene, anthracene, coumarins, those derivatives, etc. are mentioned. A quinacridone derivative, a coumarin derivative, etc. are mentioned as green fluorescence coloring matter. Rubrene, a peri MIDON derivative, etc. are mentioned as a yellow fluorochrome. As a red fluorochrome, a DCM system compound, a benzopyran derivative, a rhodamine derivative, a benzo thioxanthene derivative, azabenzthioxanthene, etc. are mentioned.

[0100]

responding to a host material besides the above-mentioned fluorochrome for a dope -- laser research, eight volumes, 694 pages, 803 pages, and 958page(1980); -- said 9 volume, the fluorochrome currently enumerated without 85 pages (1981), etc. can be used as a dope material for luminous layers.

[0101]

More than 10^{-3} weight % of the quantity by which the above-mentioned fluorochrome is doped to a host material is preferred, and its 10 or less % of the weight is preferred. If doped quantity may be unable to contribute to the improvement in luminous efficiency of an element by less than 10^{-3} weight % and exceeds 10 % of the weight, concentration quenching may occur and it may result in decline in luminous efficiency.

[0102]

On the other hand, the luminous layer which shows phosphorescence luminescence is usually formed including a phosphorescence dopant and a host material. It is preferred to use the charge transport nature organic compound which the organometallic complex which contains the metal chosen, for example from periodic table 7 thru/or 11 fellows as a phosphorescence dopant is

mentioned, and has T1 [higher than T1 (the minimum excitation triplet level) of this metal complex] as a host material.

[0103]

A ruthenium, rhodium, palladium, silver, a rhenium, osmium, iridium, platinum, and gold are mentioned preferably as this metal in the phosphorescence organometallic complex containing the metal chosen from periodic table 7 thru/or 11 fellows.

[0104]

As a host material used for the luminous layer which shows phosphorescence luminescence, Besides the material mentioned above as a host material used for the luminous layer which shows firefly luminescence, Carbazole derivatives, such as 4,4'-N,N'-dicarbazole biphenyl (WO 00/No. 70655 gazette), Tris(8-hydroxyquinoline) aluminum (USP No. 6,303,238 gazette), 2,2',2''-(1,3,5-benzene tolyl) tris [1-phenyl-1H-benzimidazole] (Appl.Phys.Lett., 78 volumes, the 1622nd paragraph, 2001), a polyvinyl carbazole (JP,2001-257076,A), etc. are mentioned.

[0105]

Furthermore, the luminous layer 5 in the organic electroluminescence devices of

this invention may contain the above-mentioned fluorochrome with the host material and the phosphorescence dopant.

[0106]

As for the quantity of the organometallic complex contained as a dopant in the luminous layer 5, 0.1 % of the weight or more is preferred, and its 30 or less % of the weight is preferred. If this quantity may be unable to contribute to the improvement in luminous efficiency of an element at less than 0.1 % of the weight and exceeds 30 % of the weight, concentration quenching may occur for the reason of organometallic complexes forming a dimer, and it may result in decline in luminous efficiency.

[0107]

In the element which used the conventional fluorescence (1-fold paragraph), the quantity of the phosphorescence dopant in the luminous layer which shows phosphorescence luminescence has the tendency for more [a little] ones to be more preferred than the quantity of the fluorescence coloring matter (dopant) contained in a luminous layer. When a fluorochrome contains in a luminous layer with a phosphorescence dopant, as for the quantity of this fluorochrome, 0.05 % of the weight or more is preferred, and its 0.05 % of the weight or more is more

preferred, and its 10 or less % of the weight is preferred, and its 2 or less % of the weight is more preferred.

[0108]

The thickness of the luminous layer 5 is not less than 5 nm preferably, and is usually 100 nm or less preferably 200 nm or less not less than 3 nm.

[0109]

Although the luminous layer 5 can also be formed by the same method as the electron hole transporting bed 4, a vacuum deposition method is usually used.

Below, how to dope an above-mentioned fluorochrome and/or phosphorescence coloring matter (phosphorescence dopant) to the host material of a luminous layer is explained.

[0110]

In spreading, by said luminous layer host material, and the coloring matter for a dope and also necessity. The coating solution which added additive agents, such as binder resin used as neither an electronic trap nor the quencher of luminescence and spreading nature improving agents, such as a leveling agent, and dissolved is prepared, and it applies on the electron hole transporting bed 4 by methods, such as a spin coat method, and it dries and the luminous layer 5 is

formed. Polycarbonate, polyarylate, polyester, etc. are mentioned as binder resin. Since it will reduce an electron hole/electron mobility if binder resin has many additions, few directions are desirable and its 50 or less % of the weight is usually preferred at the content in the luminous layer 5.

[0111]

In the case of a vacuum deposition method, said host material is paid to the crucible installed in the vacuum housing, After putting the coloring matter to dope into another crucible and exhausting the inside of a vacuum housing even to a 10^{-4} Pa grade with a suitable vacuum pump, each crucible is heated simultaneously, a host material and coloring matter are evaporated, and a layer is formed on the substrate placed by facing a crucible. What mixed the above-mentioned material by the predetermined ratio beforehand as other methods may be evaporated using the same crucible.

[0112]

When each above-mentioned dopant is doped in the luminous layer 5, in the thickness direction of the luminous layer 5, it may be doped uniformly, and it does not matter even if there is concentration distribution in a thickness direction. For example, it may dope only near the interface by the side of the electron hole

transporting bed 4, or may dope only near the interface by the side of the negative pole 7 conversely.

[0113]

The luminous layer 5 may contain ingredients other than the above in the range which does not spoil the performance of this invention.

[0114]

In the element shown in drawing 1, the role which pours an electron into the luminous layer 5 via layers direct [the negative pole 7 provided on the luminous layer 5] or arbitrary is played. Although the material used as the negative pole 7 can use the material used for said anode 2, In order to perform electron injection efficiently, the low metal of a work function is preferred and suitable metal or those alloys, such as tin, magnesium, indium, calcium, aluminum, and silver, are used. As an example, the alloy electrode of low work functions, such as a magnesium silver alloy, a magnesium indium alloy, and an aluminium-lithium alloy, is mentioned.

[0115]

The thickness of the negative pole 7 is usually the same as that of the anode 2. Since the stability of an element is increased, it is preferred that a work function

laminates a stable metal layer to the atmosphere further highly on this, in order to protect the negative pole 7 which comprises a low work function metal. For this purpose, metal, such as aluminum, silver, copper, nickel, chromium, gold, and platinum, is used.

[0116]

The raising the efficiency of a hole injection further and making the adhesion force to the anode 2 of the whole organic layer improve purpose, as shown in drawing 2 and 3, inserting the anode buffer layer 3 between the electron hole transporting bed 4 and the anode 2 is also performed. By inserting the anode buffer layer 3, it is effective in a power surge when the continuation drive of the element is carried out by constant current being controlled at the same time the driver voltage of an early element falls. A thin film with it can be formed, stability, i.e., the melting point, and T_g are thermally high, and not less than 100 °C is required as not less than 300 °C and T_g as the melting point. [good contact to the anode 2 and] [uniform as conditions required of the material used for the anode buffer layer 3] It is mentioned that ionization potential is low and the hole injection from the anode 2 is easy and that hole mobility is large.

[0117]

Until now for this purpose Phthalocyanine compounds, such as a copper phthalocyanine (JP,63-295695,A), Poly aniline (Appl.Phys.Lett., 64 volumes, 1245 pages, 1994), a polythiophene (Optical Materials -- 125 pages nine volumes) Metallic oxides (J. Phys.D, 29 volumes, 2750 pages, 1996), such as the organic compound and weld slag carbon films (Synth.Met., 91 volumes, 73 pages, 1997) in 1998 etc., a vanadium oxide, a ruthenium oxidation thing, a molybdenum oxide, are reported.

[0118]

the layer (JP,11-251067,A.) containing the low molecule organic compound and electronic receptiveness compound of a hole injection and transportability At JP,2000-159221,A etc. to a statement and the non-conjugated system high molecular compound containing an aromatic amino group etc. the layer (JP,11-135262,A.) which dopes an electronic receptiveness compound if needed JP,11-283750,A, JP,2000-36390,A, Although the layer (JP,10-92584,A) containing conductive polymers, such as polythiophenes, such as JP,2000-150168,A, JP,2001-223084,A, and WO 97/No. 33193 gazette, are mentioned, it is not limited to these.

[0119]

As the anode buffer layer 3 above-mentioned material, which compound of a low molecule and polymers is used.

Things are also possible.

[0120]

Although thin film forming is possible also for the case of the anode buffer layer 3 like the electron hole transporting bed 4, when it is an inorganic substance, a sputtering technique, electron beam evaporation method, and plasma CVD method are used further.

[0121]

When the thickness of the anode buffer layer 3 formed as mentioned above is formed using a low molecular weight compound, 3 nm of minimums are usually about 10 nm preferably, and 100 nm of maximums are usually about 50 nm preferably. 5 nm of minimums of the thickness of the anode buffer layer 3 formed using a high molecular compound are usually about 10 nm preferably, and 1000 nm of maximums are usually about 500 nm preferably.

[0122]

As shown in drawing 3 for the purpose of raising the luminous efficiency of an element further, the electron transport layer 6 may be formed between the

luminous layer 5 and the negative pole 7. The electron transport layer 6 is formed from the compound which can convey efficiently the electron poured in from the negative pole 7 in inter-electrode [which was able to give the electric field] in the direction of the luminous layer 5.

[0123]

It is required for the electron injection efficiency from the negative pole 7 to be a compound which can convey efficiently the electron which has high electron mobility and was poured in highly as an electron-transport-property compound used for the electron transport layer 6.

[0124]

As a material which fulfills such conditions, complex compounds, such as an aluminium complex of 8-hydroxyquinoline (JP,59-194393,A), The complex compound of 10-hydroxybenzo[h] quinoline, an oxadiazole derivative, A distyrylbiphenyl derivative, a silole derivative, 3-, or 5-hydroxy flavone complex compound, A benzoxazole complex compound, a benzothiazole complex compound, tris benzimidazolyl benzene (U.S. Pat. No. 5,645,948), A quinoxaline compound (JP,6-207169,A), a phenanthroline derivative (JP,5-331459,A), 2-t-butyl-9,10-N,N'-dicyanoanthraquinonediiimine, n type hydrogenation

amorphous carbonization silicon, n type zinc sulfide, n type zinc selenide, etc.
are mentioned.

[0125]

The thickness of the electron transport layer 6 is not less than 10 nm preferably, and is usually 100 nm or less preferably 200 nm or less not less than 5 nm.

[0126]

The electron transport layer 6 is formed by laminating on the luminous layer 5 with the applying method or a vacuum deposition method like the electron hole transporting bed 4. Usually, a vacuum deposition method is used.

[0127]

To the interface of the negative pole 7, and drawing 1 and the luminous layer 5 of 2 or the interface of the negative pole 7 and the electron transport layer 6 of drawing 3. Inserting ultra-thin insulator layers (0.1-5 nm of thickness), such as LiF, MgF₂, and Li₂O, It is the effective method of raising the efficiency of element (Appl.Phys.Lett., 70 volumes, 152 pages, 1997; JP,10-74586,A;IEEE Trans.Electron.Devices, 44 volumes, 1245 pages, 1997).

[0128]

The organic electroluminescence devices of this invention may have arbitrary

layers between [other than each class mentioned above] the anode and the negative pole. For example, an electron transport layer and an electron hole transporting bed may be constituted by providing a hole blocking layer so that the negative pole side interface of a luminous layer may be touched, or laminating two or more layers respectively in order to prevent that the electron hole which was not recombined by a luminous layer passes to the negative pole side. It is also possible to laminate to contrary to drawing 1 structure, i.e., substrate, top 1 also about lamination in order of the negative pole 7, the luminous layer 5, the electron hole transporting bed 4, and the anode 2, and at least one side is able to provide the organic electroluminescence devices of this invention between two substrates with high transparency, as mentioned already. It is also possible similarly to laminate in drawing 2 and a structure contrary to said class composition shown in 3.

[0129]

Also in any of the structure where a single element, the element which consists of structure where it has been arranged at array form, the anode, and the negative pole have been arranged in the shape of an X-Y matrix, organic electroluminescence devices can apply the organic electroluminescence

devices of this invention.

[0130]

According to such organic electroluminescence devices, hole-injection transportation ability is high to the electron hole transporting bed 4, And by there being also few barriers with a luminous layer interface, having still higher Tg, and making the 2,7-diamino naphthalene compound of this invention which is not crystallized easily contain, Current efficiency and luminous efficiency are high, and a low voltage drive is possible, and organic electroluminescence devices excellent in driving stability and heat resistance are provided.

[0131]

Since it is fundamentally usable to the layer of a hole injection and transportability, the 2,7-diamino naphthalene compound expressed with said general formula (I) concerning this invention can be adopted not only as drawing 1 - the electron hole transporting bed in drawing 3 but as any layer provided between the anode and a luminous layer.

[Example]

[0132]

Next, although an example and a comparative example are given and this

invention is explained more concretely, this invention is not limited to the statement of the following examples, unless the gist is exceeded.

[0133]

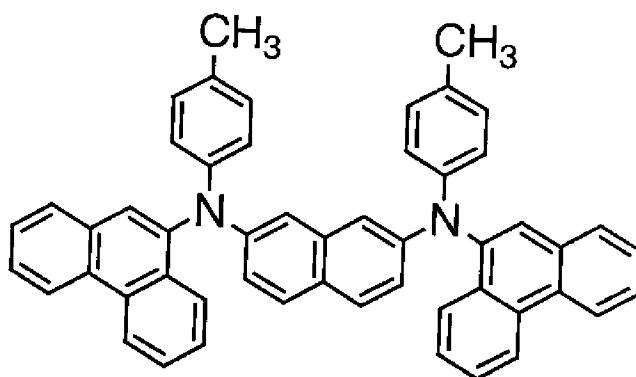
Example 1: Composition of an illustration compound (1)

The 2,7-diamino naphthalene compound (illustration compound (1): compound of No.1 of table-1) of this invention shown in the following structural formulae was compounded.

[0134]

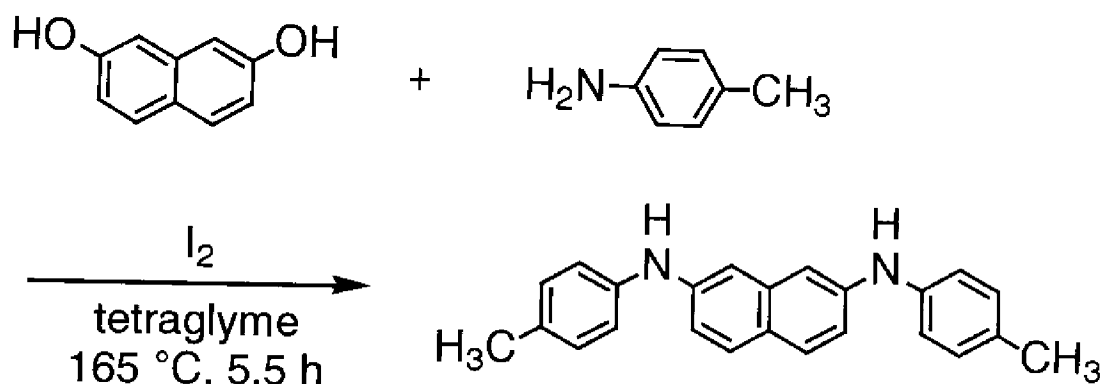
[Formula

13]



[0135]

1) Composition of N,N'-bis(4-methylphenyl)-2,7-diaminonaphthalene



[0136]

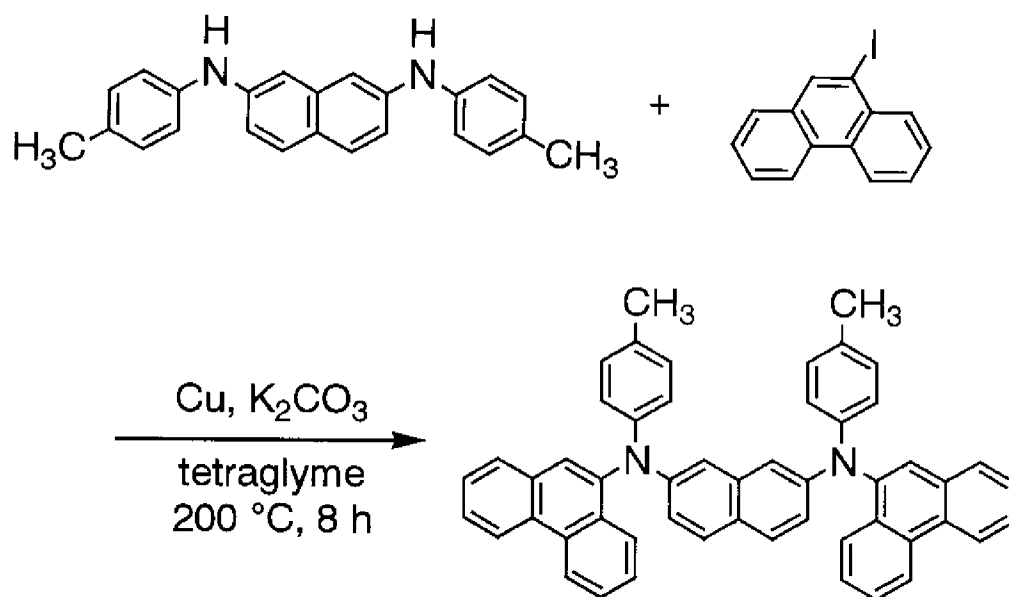
16.3 g (0.102 mol) of 2,7-dihydroxynaphthalene, Tetraethylene glycol wood ether 4mL was added to 27.3 g (0.245 mol) of p-toluidine, and the iodine 1.3g (0.005 mol), and it was made to react at 165 °C under a nitrogen atmosphere for 5.5 hours. Ethanol 150mL was added to reaction mixture after ending reaction, and it was made to flow back for 10 minutes. The white needle crystal 27.5g (mol [0.081], 80% of yield) was obtained by collecting the obtained crystals by filtration after radiational cooling.

[0137]

2) Composition of N,N'-bis(4-methylphenyl)-N,N'-JI (9-phenan
toly)-2,7-diaminonaphthalene

[Formula

15]



[0138]

6.40 g (0.019 mol) of N,N'-bis(4-methylphenyl)-2,7-diaminonaphthalene, Tetraethylene glycol wood ether 30mL was added to 16.0 g (0.042 mol) of 9-iodophenanthrene, the copper 2.4g (0.038 mol), and the potassium carbonate 7.8g (0.057 mol), and it was made to react at 200 ** under nitrogen for 8 hours.

After ending reaction, tetrahydrofuran (THF) 150mL was added to reaction mixture, and the ** exception carried out the insoluble matter. After carrying out decompression distilling off of the THF contained in filtrate, filtration recovered the sediment obtained by flowing into methanol. Silica gel column chromatography (developing solvent: hexane/toluene =3/1) refined the obtained sediment, and the opalescence powder 7.54g (mol [0.011], 58% of yield) was obtained by washing with methanol.

[0139]

When sublimation refining of this opalescence powder 0.72g was carried out, the thin yellow candy-like solids 0.51g (72% of yield) were collected. Since the molecular weight was 690 when mass analysis of salvaged material was conducted, it checked that this thin yellow candy-like solid was an illustration compound (1). When differential-thermal-analysis measurement was carried out by DSC-20 by a SEIKO electronic company, T_g showed 152 ** and a high value. The melting point was not able to be detected because of high amorphous nature.

[0140]

The ¹H-NMR (CDCl₃, 270 MHz) data of this thin yellow candy-like solid is shown

below.

8.69	(d,	2H,	J=9.3)
8.66	(d,	2H,	J=9.3)
8.06	(dd,	2H,	J=8.2, 0.9)
7.70	(dd,	2H,	J=7.7, 1.6)
7.62	(dd,	2H,	J=6.9, 1.6)
7.60-7.49	(m,		6H)
7.55	(s,		2H)
7.43	(ddd,	2H,	7.2, 6.9, 0.9)
7.13	(dd,	2H,	J=8.9, 2.0)
7.02-6.99	(m,		8H)
6.89	(d,	2H,	J=2.0)
2.26	(s,		6H)

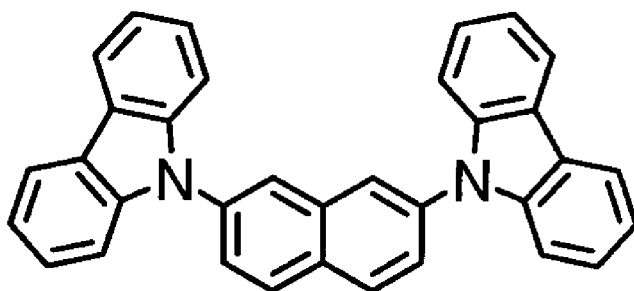
[0141]

Example 2: Composition of an illustration compound (91)

The 2,7-diamino naphthalene compound (illustration compound (91): compound of No.91 of table-1) of this invention shown in the following structural formulae was compounded.

[Formula

16]

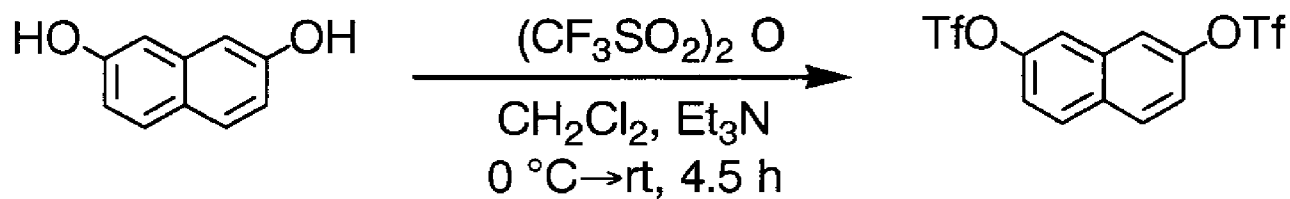


[0142]

1) Composition of 2,7-bis(trifluoromethyl sulfonyloxy)naphthalene

[Formula

17]



[0143]

Methylene chloride 300mL and triethylamine 50mL were added to 11.8 g (0.074

mol) of 2,7-dihydroxynaphthalene, and it cooled at 0 °C under nitrogen. After adding the anhydrous trifluorosulfonic acid 50.0g (0.177 mol) over 2 hours from a dropping funnel, temperature up was carried out to the room temperature over 2 hours, and it stirred for 30 minutes at the room temperature. The organic layer was isolated preparatively, after emitting the reaction mixture to water 300mL and stirring it. They are the white crystals 23.6g by recrystallizing in methanol after desiccation, filtration, and concentration with anhydrous magnesium sulfate. (0.056 mol and 75% of yield) were obtained.

[0144]

2) Composition of 2,7-bis(N-carbazolyl)naphthalene

[Formula

18]

[0145]

3.50 g (0.0083 mol) of 2,7-bis(trifluoromethyl sulfonyloxy)naphthalene, Xylene 30mL is added to 3.31 g (0.0198 mol) of carbazole, and the potassium carbonate 6.48g (0.0469 mol), The bottom of nitrogen, after carrying out temperature up to 80 **, It added having applied xylene solution 10mL of 0.17 g (0.00016 mol) of tris(dibenzylidene acetone)dipalladium (0), and the catalyst prepared from 0.36g (0.00065 mol) of 1,1'-bis(diphenylphospino)ferrocene for 5 minutes. After making it react at 120 ** for 8 hours, it condensed after cooling to a room temperature. Chloroform and water were added, the sludge was dissolved and the organic layer was isolated preparatively. It is the white powder 0.85g by silica gel column chromatography's (developing solvent's: hexane/toluene =4/1) refining after desiccation, filtration, and concentration with anhydrous magnesium sulfate, and washing with methanol. (0.0019 mol and 22% of yield) were obtained.

[0146]

Since the molecular weight was 458 when mass analysis of this white powder was conducted, it checked that this white powder was an illustration compound (91). When differential-thermal-analysis measurement was carried out by DSC-20 by a SEIKO electronic company, Tg was 93 ** and the melting point was 250 **.

[0147]

The ¹H-NMR (CDCl₃, 270 MHz) data of this white powder is shown below.

8.20	(d,	2H,	J=8.5)
8.19	(dd,	4H,	J=8.0, 1.5)
8.12	(d,	2H,	J=1.9)
7.79	(dd,	2H,	J=8.5, 1.9)
7.53	(dd,	4H,	J=8.0, 1.5)
7.45	(ddd,	4H,	8.0, 7.6, 1.5)
7.33	(ddd,	4H,	8.0, 7.6, 1.5)

[0148]

Example 3: Electrochemical / spectrophotometrical measurement of an illustration compound (1)

With the electrochemical analyzer 650A made from BAS, in the methylene

chloride solution of the perchloric acid tetrabutylammonium 0.1M, When used GCE made from BAS as a work electrode, Pt line was used as a counter-electrode, Ag line was used as a reference electrode and the SAIRIKKU voltammetry of the illustration compound (1) was measured, an oxidation-reduction potential is 0.83Vvs.S C E, and showed the value moderate as an electron hole transporting bed material of organic electroluminescence devices. The oxidation-reduction potential was converted using ferrocene / ferro SENIUMU as an inner mark substance.

[0149]

When the ionization potential of the film sample of the illustration compound (1) which formed membranes by carrying out vacuum deposition was measured using the ultraviolet-rays electronic analysis apparatus by Riken Keiki Co., Ltd. (AC-1), it is 5.07 eV and the value moderate as an electron hole transporting bed material of organic electroluminescence devices was shown.

[0150]

The result of having measured the absorption spectrum of the visible part of this film sample is shown in drawing 4. As shown in drawing 4, high transparency was shown in the light range.

[0151]

Comparative example 1: Composition of a comparison compound (L)
2,6-dihydroxynaphthalene was used instead of 2,7-dihydroxynaphthalene, and
also it is the same method as Example 1, and the comparison compound (L)
expressed with the following structural formula was compounded.

[0152]

[Formula

19]

[0153]

Comparative example 2: Electrochemical / spectrophotometrical measurement

of a comparison compound (L)

When the SAIRIKKU voltammetry was measured by the same method as Example 3 about this comparison compound (L), the oxidation-reduction potential was 0.51Vvs.S C E. The oxidation-reduction potential was converted using ferrocene / ferro SENIUMU as an inner mark substance. When the ionization potential of the film sample was measured like Example 3, it was 4.75 eV and all were lower than the illustration compound (1). The result of having measured the absorption spectrum of the visible part of a film sample is as being shown in drawing 4, and is inferior to an illustration compound (1) also about transparency.

[0154]

Example 4: Production of the organic electroluminescence devices which use an illustration compound (1)

The organic electroluminescence devices which have the structure shown in drawing 3 were produced by the following methods.

[0155]

What (Geomatec make; electron beam membrane formation article; sheet resistance 15 ohm/sq) deposited 120 nm of indium-tin-oxide (ITO) transparent

conducting films on the glass substrate is patterned after the stripe of 2-mm width using the usual photolithography technique and chloride etching. The anode 2 was formed. The ITO board which carried out pattern formation was dried by the nitrogen blow after washing in order of ultrasonic cleaning by acetone, rinsing by pure water, and ultrasonic cleaning by isopropyl alcohol, and, finally the ultraviolet-rays ozone wash was performed.

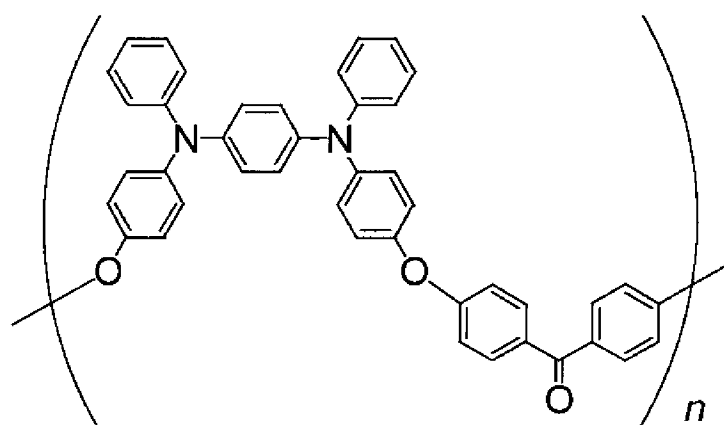
[0156]

next -- as the anode buffer layer 3 -- aromatic diamine content polyether (P-1) (weight average molecular weight 25,300; glass transition temperature of 171 **) of the following structure -- and -- this (P-1) -- it received and the spin coat of 10% of the weight of the following compound (P-2) was carried out on the above-mentioned glass substrate on condition of the following.

[0157]

[Formula

20]

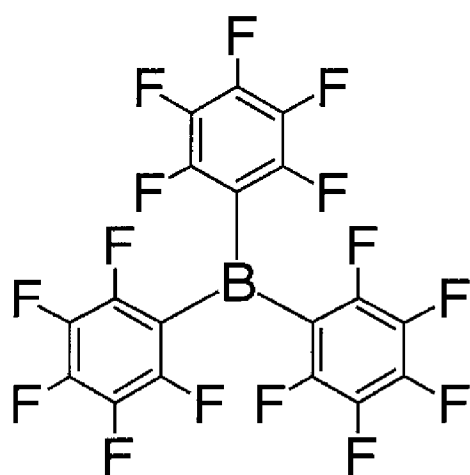


(P-1)

[0158]

[Formula

21]



(P-2)

[0159]

Solvent : Ethyl benzoate

(P-1) Concentration: 20 [mg/ml]

(P-2) Concentration: 2 [mg/ml]

Spina number of rotations : 1500 [rpm]

Spina turnover time: 30 [a second]

Drying condition : It is 100 °C and is 1.5 hours.

[0160]

The anode buffer layer 3 which has the uniform thin film shape of 30-nm thickness with the above-mentioned spin coat was formed.

[0161]

Next, the substrate 1 which carried out spreading membrane formation of the anode buffer layer 3 was installed in the vacuum evaporator. It exhausted using the oil diffusion pump provided with the liquid nitrogen trap after the oil sealed rotary pump performed rough exhaust air of this device until the degree of vacuum in a device became below 2×10^{-6} Torr (about 2.7×10^{-4} Pa).

[0162]

The illustration compound (1) was put into the ceramic crucible arranged in this device, and it vapor-deposited by heating with the tantalum wire heater around a crucible. The degree of vacuum at the time of vacuum evaporation is 1.3×10^{-6} Torr (about 1.7×10^{-4} Pa), and formed the electron hole transporting bed 4 of 40 nm of thickness with the evaporation rate of 0.1-0.17 nm (an average of 0.13 nm/(second))/second.

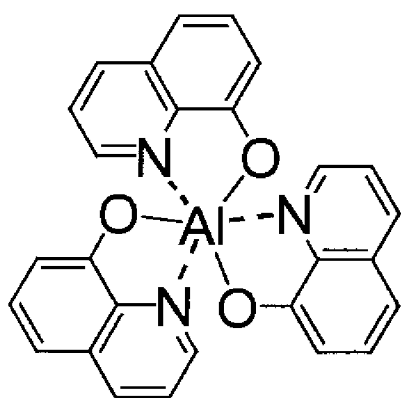
[0163]

Then, the 8-hydroxyquinoline complex (aluminum(C₉H₆ NO)₃) of the aluminum shown in the following structural formulae (Q-1) and (Q-2) as a material of the luminous layer 5 and C545T were vapor-deposited simultaneously. It was made for the rate of C545T to the 8-hydroxyquinoline complex of aluminum to be 0.8% of the weight.

[0164]

[Formula

22]

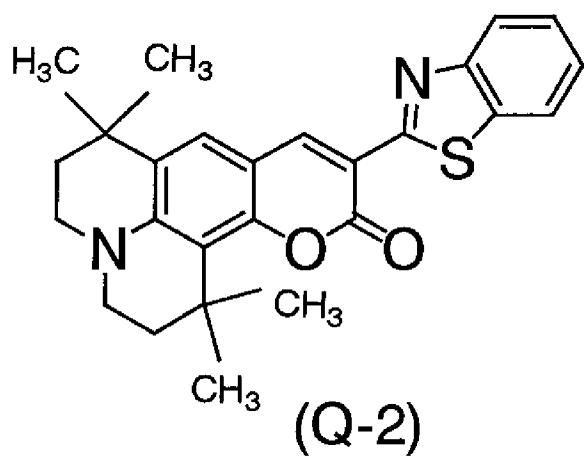


(Q-1)

[0165]

[Formula

23]



(Q-2)

[0166]

The evaporation rate of 0.15nm/[a second and] and C545T of the evaporation rate of 0.7×10^{-6} Torr (about 0.9×10^{-4} Pa) and the 8-hydroxyquinoline complex of aluminum is 0.0012nm/second, and the degree of vacuum at the time of this vacuum evaporation formed the luminous layer 5 of 30 nm of thickness.

[0167]

Then, the 8-hydroxyquinoline complex (Q-1) of the above-mentioned aluminum is vapor-deposited like the electron hole transporting bed 4 as the electron transport layer 6, The degree of vacuum at the time of 8-hydroxyquinoline complex vacuum evaporation of aluminum at this time was 0.6×10^{-6} Torr (about 0.8×10^{-4} Pa), the evaporation rate was 0.2nm/second, and the thickness of the vapor-deposited electron transport layer 6 was 30 nm.

[0168]

When carrying out vacuum deposition of the above-mentioned electron hole transporting bed 4, the luminous layer 5, and the electron transport layer 6, substrate temperature was held to the room temperature.

[0169]

Here, the element which performed vacuum evaporation to the electron

transport layer 6 was once taken out from the inside of said vacuum evaporator in the atmosphere, and as a mask for negative pole vacuum evaporation, the stripe shape shadow mask of 2-mm width was stuck for the element so that it might intersect perpendicularly with the ITO stripe of the anode 2. This element was installed in another vacuum evaporator, and it exhausted until the degree of vacuum in a device became below 2.5×10^{-6} Torr (about 3.2×10^{-4} Pa) like the time of organic layer formation.

[0170]

Then, lithium fluoride (LiF) was vapor-deposited by evaporation rate [of 0.01 nm/second], and degree-of-vacuum 5.8×10^{-6} Torr (about 7.5×10^{-4} Pa), using a molybdenum boat as the negative pole 7, and membranes were formed on the electron transport layer 6 at 0.3 nm of thickness. Next, aluminum was similarly heated by the molybdenum boat, the aluminum layer of 80 nm of thickness was formed by evaporation rate [of 0.5 nm/second], and degree-of-vacuum 1×10^{-5} Torr (about 1.3×10^{-3} Pa), and the negative pole 7 was completed. The substrate temperature at the time of vacuum evaporation of the above two-layer type negative pole 7 was held to the room temperature.

[0171]

The organic electroluminescence devices which have an emission area portion with a size of 2 mm x 2 mm as mentioned above were obtained. The luminescent characteristic of this element is shown in table-2, and a drive life is shown in table-3. In table-2, the value in 100 cd/m², and luminosity/current show inclination of a luminosity-current density characteristic, and, as for light emitting luminance, voltage shows the value in 100 cd/m² respectively, as for the value in the current density of 250 mA/cm², and luminous efficiency. In table-3, a drive life shows the luminosity half line in initial luminance 5000 cd/m² and a room temperature drive.

[0172]

As shown in table-2, it is clear that the fall of driver voltage was attained and the high-intensity and efficient element was obtained by use of the electron hole transporting bed containing an illustration compound (1). It is clearer than table-3 that the element with a long drive life which is excellent in heat resistance was obtained.

[0173]

Comparative example 3: Production of the organic electroluminescence devices which use a comparison compound (L)

Organic electroluminescence devices were produced like Example 4 except having used the comparison compound (L) which is a 2,6-diamino naphthalene compound instead of the illustration compound (1) as a material of the electron hole transporting bed 4. The luminescent characteristic of this element is shown in table-2.

[0174]

Comparative example 4: Production of the organic electroluminescence devices which use a comparison compound (A-3) Instead of the illustration compound (1), organic electroluminescence devices were produced like Example 4 as a material of the electron hole transporting bed 4 except having used said 4,4'-bis[N-(1-naphthyl)-N-phenylamino] biphenyl (A-3). The luminescent characteristic of this element is shown in table-2, and a drive life is shown in table-3.

[0175]

Table -As shown in 2 and table-3, compared with the element produced in Example 4, it was low and the luminous efficiency of the element produced by the comparative examples 3 and 4 had the short drive life.

[0176]

表－2

<div></div>	発光輝度 [cd/m ²]	発光効率 [lm/W]	輝度/電流 [cd/A]	電圧 [V]
実施例4	38370	11.6	12.6	3.5
比較例3	23180	4.2	6.9	5.1
比較例4	28180	9.0	10.1	3.6

表－3

<div></div>	駆動寿命 [h]
実施例4	150
比較例4	90

The light source in which the organic electroluminescence devices by this invention employed the feature as the field and surface light object of a flat panel display (for example, the object for OA computers is a flat TV) efficiently. As a display device for mount which can consider the application to (for example, the light source of a copying machine and the back light source of a liquid crystal display or instruments), the plotting board, and a beacon light and as which high heat resistance and long lasting nature are required especially, the technical value is large.

[Brief Description of the Drawings]

[0179]

[Drawing 1] It is a typical sectional view showing an example of the embodiment of the organic electroluminescence devices of this invention.

[Drawing 2] It is a typical sectional view showing another example of the embodiment of the organic electroluminescence devices of this invention.

[Drawing 3] It is a typical sectional view showing another example of the embodiment of the organic electroluminescence devices of this invention.

[Drawing 4] It is the absorption-spectrum chart of a film sample measured by

Example 3 and the comparative example 2.

[Description	of	Notations]
--------------	----	------------

[0180]		
--------	--	--

1		Substrate
---	--	-----------

2		Anode
---	--	-------

3	Anode	buffer layer
---	-------	--------------

4	Electron	hole transporting bed
---	----------	-----------------------

5		Luminous layer
---	--	----------------

6	Electron	transport layer
---	----------	-----------------

7		Negative pole
---	--	---------------

2.**** shows the word which can not be translated.

3.In the drawings, any words are not translated.

DESCRIPTION OF DRAWINGS

[Brief Description of the Drawings]

[0179]

[Drawing 1] It is a typical sectional view showing an example of the embodiment of the organic electroluminescence devices of this invention.

[Drawing 2] It is a typical sectional view showing another example of the embodiment of the organic electroluminescence devices of this invention.

[Drawing 3] It is a typical sectional view showing another example of the embodiment of the organic electroluminescence devices of this invention.

[Drawing 4] It is the absorption-spectrum chart of a film sample measured by

Example 3 and the comparative example 2.

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2004-323509

(P2004-323509A)

(43) 公開日 平成16年11月18日(2004.11.18)

(51) Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C07C 211/61	C07C 211/61	3K007
C07D 207/34	C07D 207/34	4C023
C07D 209/82	C07D 209/82	4C031
C07D 209/88	C07D 209/88	4C034
C07D 213/74	C07D 213/74	4C036
審査請求 未請求 請求項の数 6 O L (全 48 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号	特願2004-85036 (P2004-85036)	(71) 出願人	000005968
(22) 出願日	平成16年3月23日 (2004.3.23)		三菱化学株式会社
(31) 優先権主張番号	特願2003-103010 (P2003-103010)		東京都港区芝五丁目3番8号
(32) 優先日	平成15年4月7日 (2003.4.7)	(74) 代理人	100086911
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		弁理士 重野 剛
		(72) 発明者	飯田 宏一朗
			神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番
			地 株式会社三菱化学科学技術研究センタ
			一内
		(72) 発明者	塩谷 武
			神奈川県横浜市青葉区鴨志田町1000番
			地 株式会社三菱化学科学技術研究センタ
			一内
		最終頁に続く	

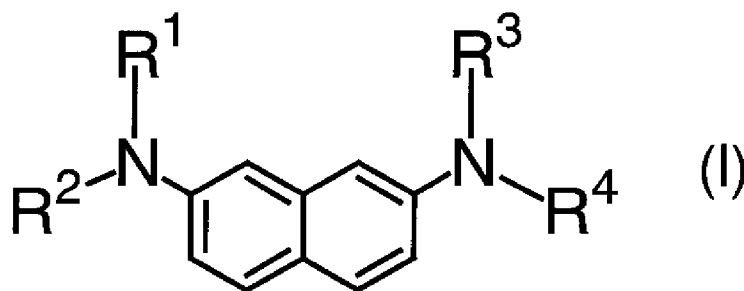
(54) 【発明の名称】 2, 7-ジアミノナフタレン化合物、電荷輸送材料、有機電界発光素子材料、および有機電界発光素子

(57) 【要約】

【課題】電流効率、発光効率が高く、低電圧駆動が可能で駆動安定性、耐熱性に優れた安定した発光特性を示す有機電界発光素子を提供する。

【解決手段】下記一般式 (I) で表される新規 2, 7-ジアミノナフタレン化合物。この 2, 7-ジアミノナフタレン化合物を含む層を有する有機電界発光素子。

【化 2 4】



(一般式 (I) 中、 $R^1 \sim R^4$ は、各々独立に、置換基を有していても良い芳香族基を表すか、あるいは R^1 と R^2 、 R^3 と R^4 が結合して、各々独立に、置換基を有していても良い環を形成する。

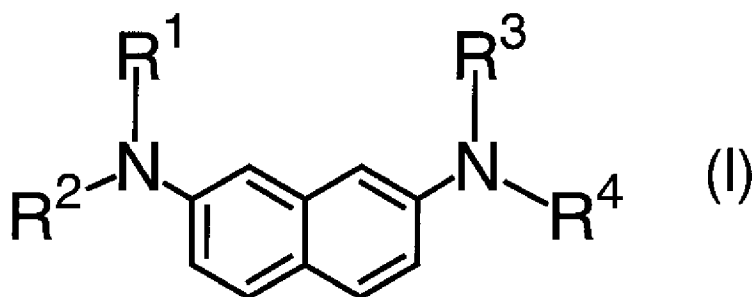
但し、 $R^1 \sim R^4$ 、 R^1 と R^2 が結合して形成する環、および R^3 と R^4 が結合して形

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

下記一般式（I）で表される 2，7－ジアミノナフタレン化合物。

【化 1】



10

（一般式（I）中、 $R^1 \sim R^4$ は、各々独立に、置換基を有していても良い芳香族基を表すか、あるいは R^1 と R^2 、 R^3 と R^4 が結合して、各々独立に、置換基を有していても良い環を形成する。

但し、 $R^1 \sim R^4$ 、 R^1 と R^2 が結合して形成する環、および R^3 と R^4 が結合して形成する環のうちの少なくとも 1 つは、3 環以上が縮合してなる、置換基を有していても良い芳香族縮合環基を表す。）

【請求項 2】

20

3 環以上が縮合してなる、置換基を有していても良い芳香族縮合環基が、置換基を有していても良いフェナントリル基である、請求項 1 記載の 2，7－ジアミノナフタレン化合物。

【請求項 3】

請求項 1 または 2 に記載の 2，7－ジアミノナフタレン化合物を含む電荷輸送材料。

【請求項 4】

請求項 1 または 2 に記載の 2，7－ジアミノナフタレン化合物を含む有機電界発光素子材料。

【請求項 5】

陽極と陰極との間に発光層を有する有機電界発光素子において、請求項 1 または 2 に記載の 2，7－ジアミノナフタレン化合物を含む層を有することを特徴とする有機電界発光素子。

30

【請求項 6】

前記 2，7－ジアミノナフタレン化合物を含む層を、陽極と発光層との間に有する、請求項 5 に記載の有機電界発光素子。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、新規な 2，7－ジアミノナフタレン化合物と、これを用いた電荷輸送材料、有機電界発光素子材料および有機電界発光素子に関するものである。詳しくは、有機化合物から成る発光層に電界をかけて光を放出する薄膜型デバイスとしての有機電界発光素子に用いられる、特に正孔輸送性の層形成材料として好適な新規 2，7－ジアミノナフタレン化合物と、これを用いた電荷輸送材料、有機電界発光素子材料および、この 2，7－ジアミノナフタレン化合物を含む層を設けた有機電界発光素子に関するものである。

40

【背景技術】

【0002】

従来、薄膜型の電界発光（EL）素子としては、無機材料の II－VI 族化合物半導体である ZnS、CaS、SrS 等に、発光中心である Mn や希土類元素（Eu、Ce、Tb、Sm 等）をドーピングしたものが一般的であるが、上記の無機材料から作製した EL 素子は、

1）交流駆動が必要（50～1000Hz）、

50

2) 駆動電圧が高い(～200V)、
 3) フルカラー化が困難(特に青色)、
 4) 周辺駆動回路のコストが高い、
 という問題点を有している。

【0003】

しかし、近年、上記問題点の改良のため、有機薄膜を用いたEL素子の開発が行われるようになった。特に、発光効率を高めるため、電極からのキャリア注入の効率向上を目的として、電極の種類最適化を行い、芳香族ジアミンから成る正孔輸送層と8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体から成る発光層とを設けた有機電界発光素子の開発(Appl.Phys.Lett., 51巻, 913頁, 1987年)により、従来のアントラセン等の単結晶を用いたEL素子と比較して発光効率の大幅な改善がなされ、実用特性に近づいている。

10

【0004】

上記の様な低分子材料を用いた電界発光素子の他にも、発光層の材料として、ポリ(p-フェニレンビニレン)、ポリ[2-メトキシ-5-(2-エチルヘキシルオキシ)-1,4-フェニレンビニレン]、ポリ(3-アルキルチオフェン)等の高分子材料を用いた電界発光素子の開発や、ポリビニルカルバゾール等の高分子に低分子の発光材料と電子移動材料を混合した素子の開発も行われている。

【0005】

有機電界発光素子をフラットパネル・ディスプレイやバックライト等の光源に応用するためには、素子の信頼性を十分に確保する必要がある。しかしながら、従来の有機電界発光素子では耐熱性が不十分であり、素子の環境温度やプロセス温度の上昇により電流-電圧特性が高電圧側にシフトしたり、素子駆動時の局所的なジュール発熱により寿命が低下したり、非発光部分(ダークスポット)の発生および増加等の劣化が避けられなかった。

20

【0006】

これらの劣化の主原因は、有機層の薄膜形状の劣化である。この薄膜形状の劣化は素子駆動時の発熱等による温度上昇で、有機非晶質薄膜の結晶化(または凝集)等に起因すると考えられている。この耐熱性の低さは、材料のガラス転移温度(以下「T_g」と略す)の低さに由来すると考えられる。

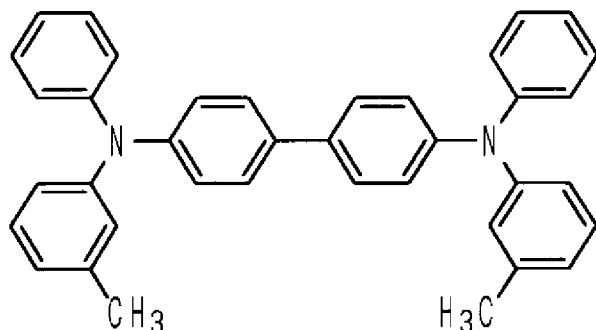
【0007】

低分子量(例えば、分子量400～600程度)の化合物、特に正孔輸送材料については、融点が低く対称性が高いものが多い。これまでに有機電界発光素子の正孔輸送材料としてよく用いられている代表的な芳香族アミン化合物を以下に示す。

30

【0008】

【化2】

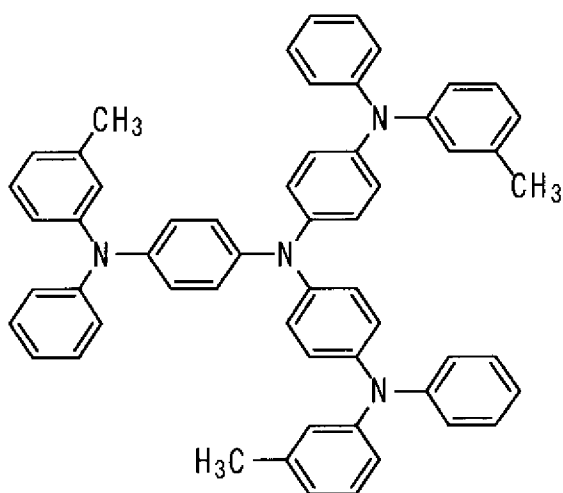


(A-1)

40

【0009】

【化 3】

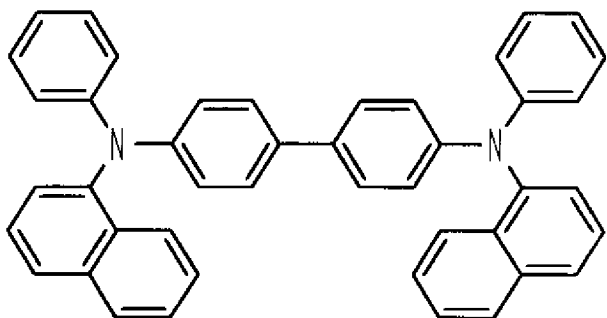


(A-2)

10

【0010】

【化 4】



(A-3)

20

【0011】

上記芳香族ジアミン (A-1) の T_g は 65°C であり、 N,N' -ジフェニル- N,N' -(3-メチルフェニル)-1,1'-ビフェニル-4,4'-ジアミン (通常 TPD と呼ばれる) の T_g は 60°C 、スターバースト型芳香族トリアミン (A-2) の T_g は 75°C (J. Phys. Chem., 97巻、6240頁、1993年)、また、 α -ナフチル基を導入した4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル (A-3) の T_g は 96°C (電子情報通信学会技術研究報告、OME95-54、1995年) である。

30

【0012】

これらの芳香族アミン化合物から形成される有機非晶質薄膜では、温度上昇により結晶化したり、正孔輸送層と発光層の2層型素子構造においては相互拡散現象を起こしたりする。そして、その結果、素子の発光特性、特に駆動電圧が高くなる劣化現象が現れ、最終的には駆動寿命の低下につながる。また、素子の駆動時以外でも、素子作成時において、蒸着、ベーキング (アニール)、配線、封止等の工程での温度上昇が見込まれるため、正孔輸送材料の T_g は更に高いことが望ましい。

40

【0013】

一方、低分子量化合物の代わりに高分子材料を有機電界発光素子の正孔輸送材料として用いる試みも行われており、例えばポリビニルカルバゾール (電子情報通信学会技術研究報告、OME90-38、1990年)、ポリシラン (Appl. Phys. Lett., 59巻、2760頁、1991年)、ポリフォスファゼン (第42回高分子学会年次大会、I-8-07およびI-8-08、1993年) 等が報告されている。しかし、ポリビニルカルバゾールは 200°C と高い T_g を有するものの正孔のトラップ等の問題があり耐久性は低く、ポリシランは光劣化等により駆動寿命が数秒と短く、ポリフォスファゼンはイオン化ポテンシャルが高く、いずれも従来の芳香族ジア

50

ミン化合物を凌ぐ特性は示していない。

【0014】

この他に、芳香族ジアミン化合物をポリカーボネートやポリメチルメタアクリレートに30～80重量%分散させた正孔輸送層も検討されているが（Jpn.J.Appl. Phys.、31巻、L960頁、1992年）、低分子化合物が可塑剤として作用してT_gを下げ、素子特性も芳香族ジアミン化合物を単独で使用的場合と比較して低下している。

【0015】

このように、有機電界発光素子の実用化に向けて、素子の耐熱性および駆動寿命に未だ大きな問題を抱えているのが現状である。

【0016】

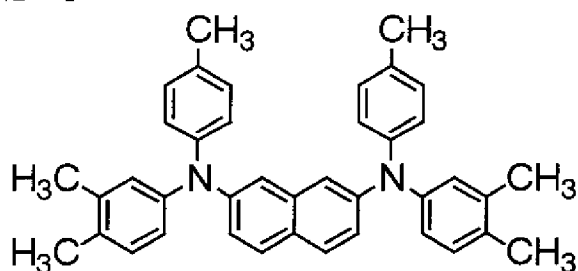
有機電界発光素子の耐熱性が改善されず、発光特性が不安定なことは、ファクシミリ、複写機、液晶ディスプレイのバックライト等の光源としては大きな問題であり、フラットパネル・ディスプレイ等の表示素子としても望ましくない特性である。特に車載用表示への応用を考える上では深刻である。

【0017】

なお、特開平8-87122号公報には下記（A-4）のような2,7-ジアミノナフタレン化合物を含む有機電界発光素子および電子写真感光体の電荷輸送層についての記載があり、また、特開平7-120949号公報には下記（A-5）、（A-6）のような2,7-ジアミノナフタレン化合物を含む電子写真感光体の感光層についての記載がある。

【0018】

【化5】



(A-4)

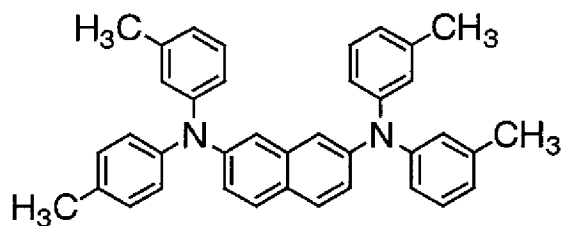
【0019】

10

20

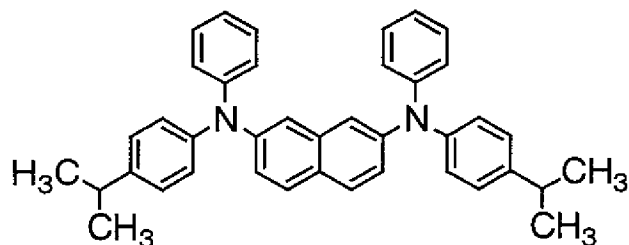
30

【化 6】



(A-5)

10



(A-6)

20

【0020】

しかし、上記化合物（A-4）、（A-5）、（A-6）は、有機電界発光素子の正孔輸送層材料としてはTgが低く、該化合物を正孔輸送層に用いた有機電界発光素子では十分な駆動寿命が得られないと考えられる。また、後述するようにジアミノナフタレン化合物はアミノ基の置換位置により電気化学的特性およびイオン化ポテンシャルが大きく異なるため、それを正孔輸送層に用いた有機電界発光素子の特性も異なる。本発明者が鋭意検討した結果、有機電界発光素子の正孔輸送材料としては、2，7-位置換体が特に有用であることを見出したが、特開平8-87122号公報および特開平7-120949号公報にはアミノ基の置換位置と電気化学的特性およびイオン化ポテンシャルに関する記載はない。

30

【0021】

特開平2-44363号公報にはジアミノナフタレン化合物を含有する電子写真感光体についての記載があるが、この公報に記載されている化合物もまた有機電界発光素子の正孔輸送層材料としてはTgが低いと考えられる。さらに、後述するように、有機電界発光素子の正孔輸送材料としては、フロンティア電子軌道が窒素原子に置換したアリール基に大きく広がっている化合物が、正孔移動度が大きいために有用であると考えられるが、特開平2-44363号公報記載のジアミノナフタレン化合物は窒素原子に非共役のアルキル基およびアラルキル基が置換しているため、窒素原子に置換したアルキル基およびアラルキル基にフロンティア電子軌道が広がらず、正孔移動度が小さいと考えられ、有機電界発光素子の正孔輸送層材料としては好ましくない。しかも、本公報に記載される例示化合物は全て1，5-位置換体であり、電気化学的特性およびイオン化ポテンシャルの面からも有機電界発光素子の正孔輸送層材料としては2，7-位置換体には及ばないと考えられる。

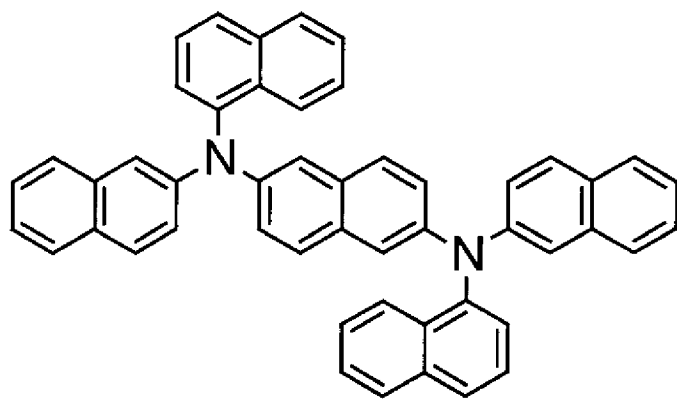
40

【0022】

特開平5-234681号公報には、下記の（A-7）のような2，6-ジアミノナフタレン化合物が有機電界発光素子の正孔輸送層材料の具体例として記載されている。

【0023】

【化 7】



(A-7)

10

【0024】

しかし、該化合物（A-7）は2，6-位置換体であるため、イオン化ポテンシャルが低く有機電界発光素子の正孔輸送層材料としては2，7-位置換体ほど好ましくないと思われる。また、後述するように、2，6-位置換体は中心のナフチレン基の電子密度が大きい
20ため、窒素原子に置換したアリール基にフロンティア電子軌道が広がらず、正孔移動度が比較的小さくなる傾向がある。さらに、該化合物は有機溶媒への溶解性の点においても改善の余地があり、生産性の面で課題があると考えられる。

【0025】

特開平6-120541号公報には、電荷輸送染料としてジアミノアセナフテン化合物を含む有機太陽電池についての記載があり、特開平4-181260号公報および特開平2-44364号公報にはジアミノフェナントレンを含む電子写真感光体についての記載があり、特開平2-44365号公報にはジアミノアントラセンを含む電子写真感光体についての記載がある。しかし、これらの、3環以上が縮合してなる縮合環基に2個以上の
30アミノ基が置換された化合物は、中心の縮合環基の電子雲が大きく広がっているため、窒素原子に置換したアリール基にフロンティア電子軌道が広がらず、正孔移動度が比較的小さく、正孔輸送層材料として好ましくないと考えられる。さらに、これらの3環以上の縮合環基に2個以上のアミノ基が置換された化合物は、LUMO（最低非占有分子軌道）のエネルギーレベルが低く、比較的長波長領域に吸収および発光波長をもつため、特に青色の有機電界発光素子の正孔輸送層材料としては問題がある。

【特許文献1】特開平8-87122号公報

【特許文献2】特開平7-120949号公報

【特許文献3】特開平2-44363号公報

【特許文献4】特開平5-234681号公報

【特許文献5】特開平6-120541号公報

【特許文献6】特開平4-181260号公報

40

【特許文献7】特開平2-44364号公報

【特許文献8】特開平2-44365号公報

【非特許文献1】Appl.Phys.Lett., 51巻, 913頁, 1987年

【非特許文献2】J.Phys.Chem., 97巻, 6240頁, 1993年

【非特許文献3】電子情報通信学会技術研究報告, OME95-54, 1995年

【非特許文献4】電子情報通信学会技術研究報告, OME90-38, 1990年

【非特許文献5】Appl.Phys.Lett., 59巻, 2760頁, 1991年

【非特許文献6】第42回高分子学会年次大会, I-8-07およびI-8-08, 1993年

【非特許文献7】Jpn.J.Appl. Phys., 31巻, L960頁, 1992年

【発明の開示】

50

【発明が解決しようとする課題】

【0026】

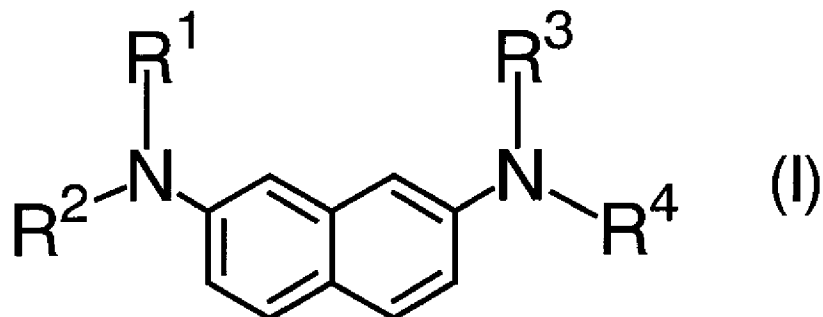
本発明は上記従来の問題点を解決し、低電圧、高効率駆動が可能であり、かつ耐熱性、駆動安定性に優れ、高温においても安定な発光特性を長時間にわたって維持できる有機電界発光素子を実現し得る新規 2, 7-ジアミノナフタレン化合物と、これを用いた電荷輸送材料、有機電界発光素子材料及び有機電界発光素子を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0027】

本発明の 2, 7-ジアミノナフタレン化合物は、下記一般式 (I) で表されることを特徴とする。

【化 8】



(一般式 (I) 中、 $R^1 \sim R^4$ は、各々独立に、置換基を有していても良い芳香族基を表すか、あるいは R^1 と R^2 、 R^3 と R^4 が結合して、各々独立に、置換基を有していても良い環を形成する。

但し、 $R^1 \sim R^4$ 、 R^1 と R^2 が結合して形成する環、および R^3 と R^4 が結合して形成する環のうちの少なくとも 1 つは、3 環以上が縮合してなる、置換基を有していても良い芳香族縮合環基を表す。)

【0028】

即ち、本発明者は、有機電界発光素子の電流効率、発光効率および駆動寿命特性等において、更なる向上を図るべく検討した結果、上記一般式 (I) で表される新規 2, 7-ジアミノナフタレン化合物が、分子中に有する 3 環以上の芳香族縮合環基の存在のために、 T_g が高く、適度なイオン化ポテンシャルを有し、正孔輸送能が高く、電流効率および発光効率の向上、さらには駆動安定性および駆動寿命の向上に有効であることを見出し、本発明に到達した。

【0029】

上記一般式 (I) で表される本発明の 2, 7-ジアミノナフタレン化合物は、その分子構造から高い T_g を有し、容易には結晶化しない有機薄膜を得ることが可能である。また、本発明の 2, 7-ジアミノナフタレン化合物のイオン化ポテンシャルおよび酸化還元電位は、それぞれ、4.9 ~ 5.3 eV 程度、0.6 ~ 1.0 V vs. SCE 程度であり、有機電界発光素子の正孔輸送層材料として適度な値を有する。そのため、本発明の 2, 7-ジアミノナフタレン化合物を正孔輸送層材料として用いた有機電界発光素子は、高い電流効率および発光効率を示す。

【0030】

一方、アミノ基の置換位置の異なるジアミノナフタレン化合物（すなわち、2, 6-ジアミノナフタレン化合物、1, 4-ジアミノナフタレン化合物、1, 5-ジアミノナフタレン化合物）のイオン化ポテンシャルおよび酸化還元電位は、対応する 2, 7-ジアミノナフタレン化合物と比較して、それぞれ、0.2 ~ 0.5 eV および 0.2 ~ 0.5 V 程度低い。このため、前述の置換基の異なるジアミノナフタレン化合物を正孔輸送層材料として用いた場合、発光層に用いられる分子とのエキサイプレックスが形成されやすくなるため、有機電界発光素子としての電流効率および発光効率が低いものとなる。

【0031】

通常、芳香族ジアミンが一電子酸化されたラジカルカチオンの正電荷は中心部に局在化し、正孔移動の妨げとなる。しかし、本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物は、中心のナフタレン環に比較して、より大きな電子雲を有する芳香族縮合環基を置換基として有しているため、正電荷が非局在化して、高い正孔輸送能を示す。さらに、本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物は、2つの窒素原子の相互作用が、前述のアミノ基の置換位置の異なるジアミノナフタレン化合物と比較して弱いため、中心のナフチレン基での正電荷の局在化が起こりにくく、より高い正孔輸送能を持つと考えられる。このため、本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物を正孔輸送層材料として用いた有機電界発光素子は、駆動安定性に優れる。

10

【0032】

本発明の電荷輸送材料は、このような本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物を含むものであり、本発明の有機電界発光素子材料は、このような本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物を含むものである。

【0033】

即ち、前記一般式(I)で表される2,7-ジアミノナフタレン化合物は、高いT_gを有し、かつ電荷輸送性が高いことから、電荷輸送性材料として電子写真感光体、有機電界発光素子、光電変換素子、有機太陽電池、有機整流素子等に好適に使用できる。また、前記一般式(I)で表される2,7-ジアミノナフタレン化合物を用いることにより、耐熱性に優れ、長期間安定に駆動(発光)する有機電界発光素子が得られ、有機電界発光素子材料として好適である。

20

【0034】

本発明の有機電界発光素子は、陽極と陰極との間に発光層を有する有機電界発光素子において、このような本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物を含む層を有するものであり、耐熱性、発光効率に優れ、駆動寿命が長い安定した有機電界発光素子である。

【発明の効果】

【0035】

本発明によれば、正孔輸送能が高く、適度なイオン化ポテンシャルを有し、耐熱性に優れた新規2,7-ジアミノナフタレン化合物と、この2,7-ジアミノナフタレン化合物を好ましくは正孔輸送層に用いることにより、電流効率、発光効率が高く、低電圧駆動が可能で駆動安定性、耐熱性に優れた安定した発光特性を示す有機電界発光素子を得ることができる。

30

【発明を実施するための最良の形態】

【0036】

以下に本発明の実施の形態について詳細に説明するが、以下に記載する構成要件の説明は、本発明の実施態様の一例(代表例)であり、本発明はこれらの内容に特定はされない。

なお、本発明において「芳香族基」とは「芳香族炭化水素基および芳香族複素環基」を意味し、従って、前記一般式(I)に導入される「芳香族縮合環基」とは、芳香族炭化水素環のみが3環以上縮合してなる芳香族縮合環基であっても良く、芳香族複素環のみが3環以上縮合してなる芳香族縮合環基であっても良く、また、芳香族炭化水素環と芳香族複素環とが合計で3環以上縮合してなる芳香族縮合環基であっても良い。

40

【0037】

まず、前記一般式(I)で表される本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物について説明する。

【0038】

本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物を示す前記一般式(I)中、R¹~R⁴は、各々独立に、置換基を有していても良い芳香族基を表すか、あるいはR¹とR²、R³とR⁴が結合して、各々独立に、置換基を有していても良い環を形成するが、R¹~R⁴、R¹とR²が結合して形成する環、およびR³とR⁴が結合して形成する環のうちの少

50

なくとも1つは、3環以上が縮合してなる、置換基を有していても良い芳香族縮合環基を表す。

【0039】

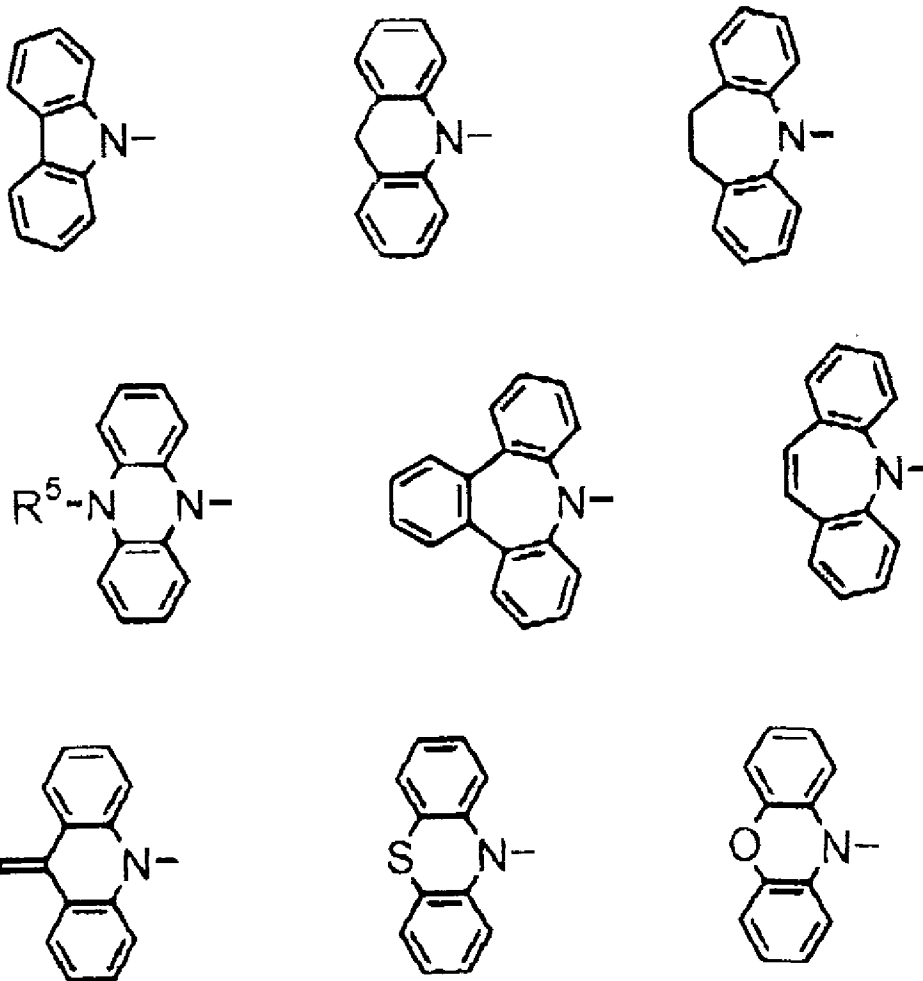
$R^1 \sim R^4$ として具体的には、フェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、ピレニル基、フルオレニル基、ベンゾフルオレニル基、フルオランテニル基、ペリレニル基、チエニル基、ベンゾチエニル基、フリル基、ベンゾフリル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾカルバゾリル基、ピリジル基、キノリル基、キノキサリル基などの5または6員環の単環、またはこれらの環の2～5縮合環からなる基、好ましくはフェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、フルオレニル基が挙げられる。これらはいずれも置換基を有していても良い。

10

【0040】

また、 R^1 と R^2 、あるいは R^3 と R^4 が互いに結合して、環を形成する場合、この環の好ましい具体例を以下に示すが、これらに限定されるものではない。

【化9】



20

30

40

(式中、 R^5 、 R^6 、 R^7 はアルキル基、芳香族炭化水素基、または水素原子を示す。)

なお、これらはいずれも置換基を有していても良い。

【0041】

前記一般式(I)で表される本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物において、 $R^1 \sim R^4$ 、 R^1 と R^2 が結合して形成する環、および R^3 と R^4 が結合して形成する環のうち少なくとも1つは、3環以上が縮合してなる、置換基を有していても良い芳香族縮合環基である。該芳香族縮合環基を有することにより、化合物のT_gが上昇するため、例えば後述する有機電界発光素子の層に使用した場合に、素子の耐熱性が向上し、好ましい。

【0042】

50

なお、化合物における正電荷の非局在化の点からは、 $R^1 \sim R^4$ から選ばれた少なくとも1つが、3環以上が縮合してなる、置換基を有していても良い芳香族縮合環基である場合がより好ましい。

【0043】

該芳香族縮合環基としては、アントリル基、フェナントリル基、ピレニル基、フルオレニル基、ピレニル基などの、5員環～6員環の3環以上、好ましくは4環以上、また通常は5環以下の縮合環からなる芳香族炭化水素基や、アクリジニル基、フェナントリジニル基、ベンゾカルバゾリル基などの、5員環～6員環の3環以上、好ましくは4環以上、また通常は5環以下の縮合環からなる芳香族複素環基などが挙げられる。

【0044】

該縮合環の中でも、より好ましいものは芳香族炭化水素環が縮合したものであり、特に好ましいものはフェナントリル基である。フェナントリル基を有することにより、該化合物を含む層を有する有機電界発光素子の、連続駆動特性が飛躍的に向上する。

【0045】

該芳香族縮合環基が結合する位置としては、 $R^1 \sim R^4$ のいずれであっても良いが、 R^1 または R^2 と、 R^3 または R^4 とに、各々1つずつ有している場合が特に好ましい。

【0046】

また、合成上は $-NR^1R^2$ と $-NR^3R^4$ が等しい、対称性の高い化合物が好ましいが、 $-NR^1R^2$ と $-NR^3R^4$ を異なる基とすることにより、該化合物を含む薄膜の非晶性が高まるという利点があり、このような非対象の化合物も好ましい。

【0047】

$R^1 \sim R^4$ の芳香族基、 R^1 と R^2 あるいは R^3 と R^4 が結合して形成する環、および上記芳香族縮合環基が有しうる置換基としては、特に制限はないが、例えば、メチル基、エチル基、*t*-ブチル基、シクロヘキシル基等の炭素数1～10のアルキル基、ビニル基等の炭素数2～11のアルケニル基、エチニル基等の炭素数2～11のアルキニル基、ベンジル基、フェネチル基等のアラルキル基、メトキシ基、エトキシ基等の炭素数2～11のアルコキシ基、フェノキシ基等のアリールオキシ基、ジメチルアミノ基、ジイソプロピルアミノ基、エチルメチルアミノ基等のジアルキルアミノ基；メチルフェニルアミノ基などのアルキルアリールアミノ基；ジフェニルアミノ基、ジトリルアミノ基、フェニルナフチルアミノ基、*N*-カルバゾリル基等のジアリールアミノ基；アセチル基等の炭素数2～11のアシル基、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基等の炭素数2～11のアルコキシカルボニル基；フェニル基、ナフチル基、フェナントリル基、アントリル基、ピレニル基、フルオレニル基、ベンゾフルオレニル基等の芳香族炭化水素基；チエニル基、ベンゾチエニル基、フリル基、ベンゾフリル基、インドリル基、カルバゾリル基、ベンゾカルバゾリル基、ピリジル基、キノリル基、キノキサリル基等の芳香族複素環基、から選ばれた1以上の置換基が挙げられ、これらはさらに置換されても良い。更なる置換基としては、特に制限はないが、例えば上述のアルキル基、芳香族炭化水素基などが挙げられる。これらの置換基は $R^1 \sim R^4$ 等の環上に2以上導入されていても良く、その場合において、置換基の位置は任意であり、また、複数の置換基は互いに同一であっても異なるものであっても良い。

【0048】

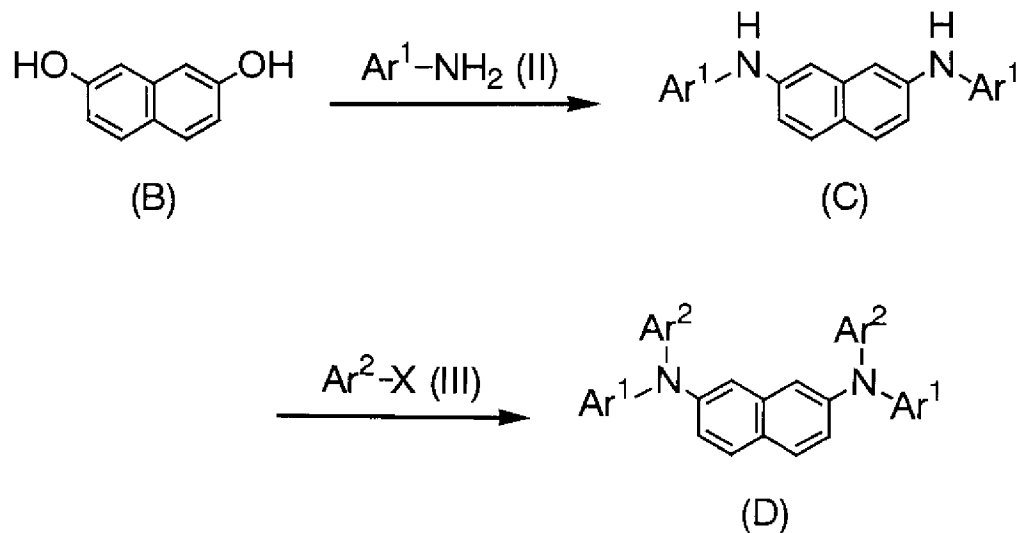
$R^1 \sim R^4$ における芳香族基、 R^1 と R^2 あるいは R^3 と R^4 が結合して形成する環、および前記芳香族縮合環基、が有し得る置換基として、上記の中でも好ましいのはメチル基、フェニル基、トリル基、*t*-ブチル基、ビフェニル基、エチル基である。

【0049】

このような本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物のうち、対象な化合物は、例えば2,7-ジヒドロキシナフタレン(B)を出発原料にして以下のように簡便に合成される。

【0050】

【化 1 0】



10

【0 0 5 1】

即ち、まず 2, 7-ジヒドロキシナフタレン (B) と一般式 (II) で表される芳香族アミンとを 1 : 2 のモル比で脱水反応させる。得られた一般式 (C) で表される中間体を、一般式 (III) で表される芳香族ハロゲン化物と反応させることにより、一般式 (D) で表される本発明の 2, 7-ジアミノナフタレン化合物が得られる。なお、上記一般式 (II), (C), (III), (D) 中、 Ar^1 および Ar^2 は、各々独立に、置換基を有していても良い芳香族基を表す。但し、 Ar^1 および Ar^2 のうちの少なくとも 1 方は、3 環以上が縮合してなる、置換基を有していても良い芳香族縮合環基を表す。X はヨウ素、臭素、塩素等のハロゲン原子である。

20

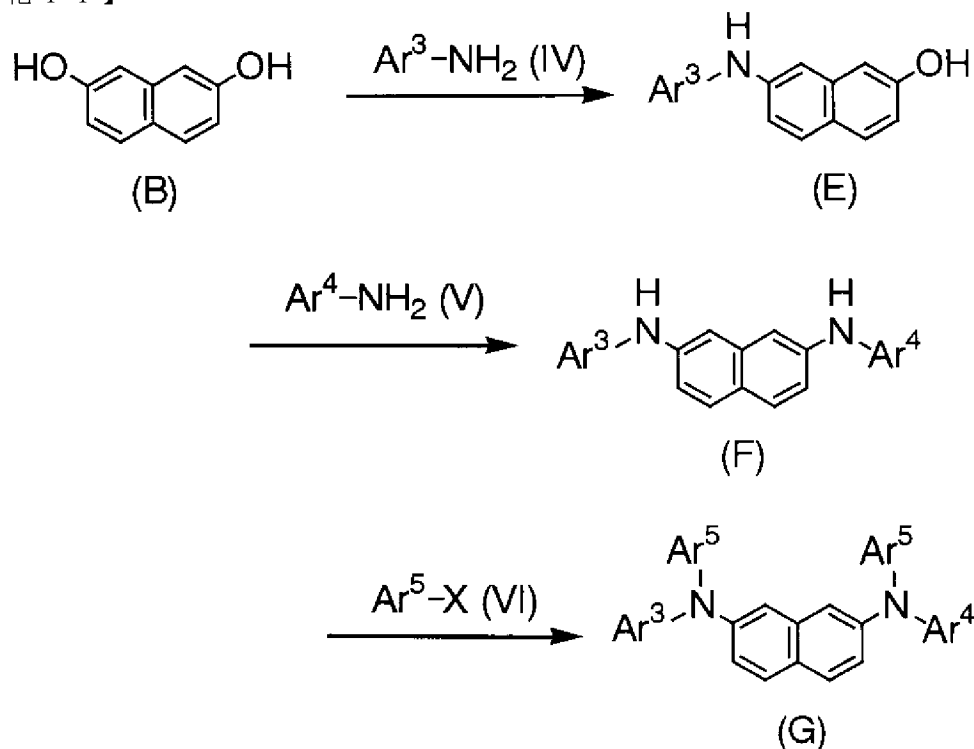
【0 0 5 2】

また、非対称型の 2, 7-ジアミノナフタレン化合物であれば、以下に示すようにして、2 種類の芳香族アミンを用い、これらを 2, 7-ジヒドロキシナフタレン (B) に段階的に反応させることにより、合成することができる。

【0 0 5 3】

30

【化 1 1】



10

20

【0054】

即ち、まず、2，7－ジヒドロキシナフタレン（B）と一般式（IV）で表される芳香族アミンとを1：1のモル比で脱水反応させる。続いて、得られた一般式（E）で表される中間体と一般式（V）で表される芳香族アミンとを1：1のモル比で脱水反応させる。得られた一般式（F）で表される中間体を、一般式（VI）で表される芳香族ハロゲン化物と反応させることにより、一般式（G）で表される本発明の2，7－ジアミノナフタレン化合物が得られる。なお、一般式（IV）～（VI），（E），（F），（G）中、 $\text{Ar}^3 \sim \text{Ar}^5$ は、各々独立に、置換基を有していても良い芳香族基を表す。但し、 $\text{Ar}^3 \sim \text{Ar}^5$ のうちの少なくとも1つは、3環以上が縮合してなる、置換基を有していても良い芳香族縮合環基を表す。Xはヨウ素、臭素、塩素等のハロゲン原子である。

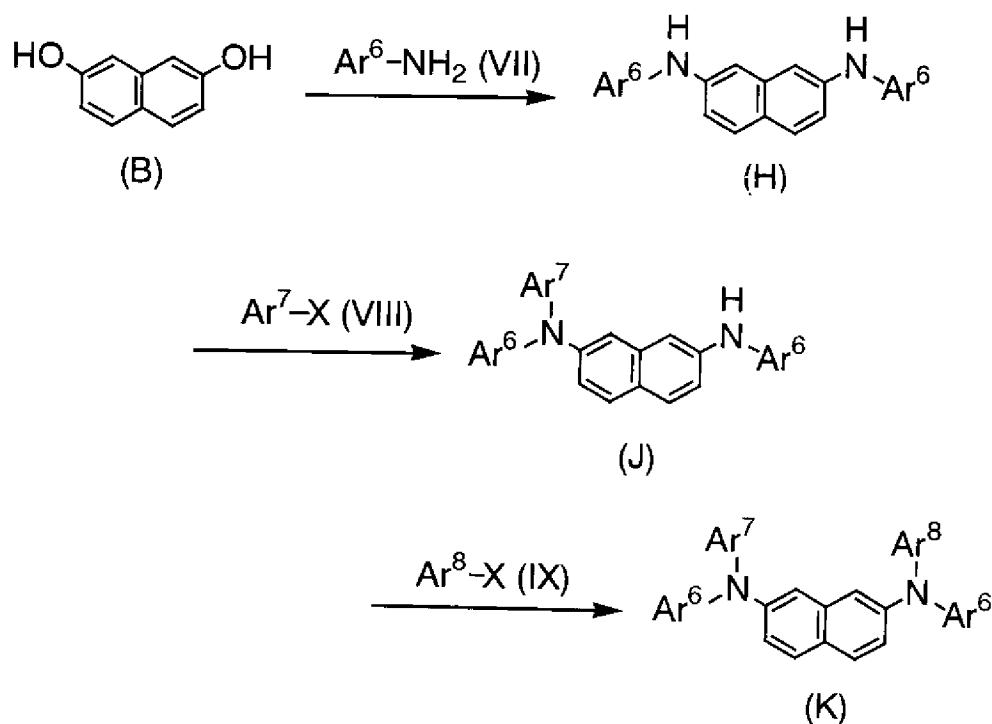
30

【0055】

非対象な2，7－ジアミノナフタレン化合物はまた、以下のようにして2種類の芳香族ハロゲン化物を用い、これらを段階的に反応させることにより、合成することもできる。

【0056】

【化 1 2】



10

20

【0057】

即ち、2，7-ジヒドロキシナフタレン（B）と一般式(VII)で表される芳香族アミンとを1：2のモル比で脱水反応させる。得られた一般式(H)で表される中間体を、一般式(VIII)で表される芳香族ハロゲン化物と1：1のモル比で反応させる。得られた一般式(J)で表される中間体を、一般式(IX)で表される芳香族ハロゲン化物と1：1のモル比で反応させることにより、一般式(K)で表される本発明の2，7-ジアミノナフタレン化合物が得られる。なお、一般式(VII)～(IX)，(H)，(J)，(K)中、 $\text{Ar}^6 \sim \text{Ar}^8$ は、各々独立に、置換基を有していても良い芳香族基を表す。但し、 $\text{Ar}^6 \sim \text{Ar}^8$ のうちの少なくとも一つは、3環以上が縮合してなる、置換基を有していても良い芳香族縮合環基を表す。Xはヨウ素、臭素、塩素等のハロゲン原子である。

30

【0058】

前記一般式(I)において、 R^1 と R^2 、あるいは R^3 と R^4 とが結合して環を形成している2，7-ジアミノナフタレン化合物であれば、上述のようにして製造された2，7-ジアミノナフタレン化合物のアミン基上の置換基について、縮合反応を行う、または2，7-ジヒドロキシナフタレン（B）と環状の2級アミンを反応させることによって得られる。

【0059】

前記一般式(I)で表される本発明の2，7-ジアミノナフタレン化合物の分子量は、通常、下限が450程度、好ましくは500程度であり、上限は通常1500程度、好ましくは1000程度である。この下限値を下回るとTgが低下する虞があり、また上限を超えると蒸着による成膜が困難になる可能性がある。

40

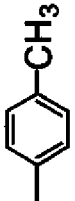
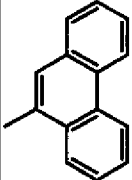
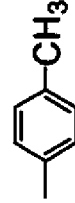
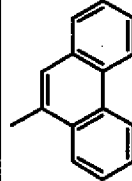
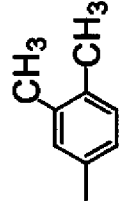
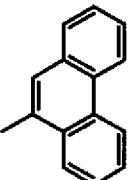
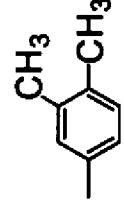
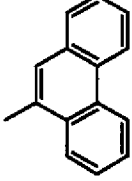
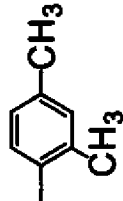
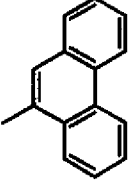
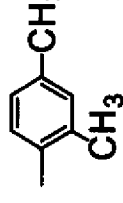
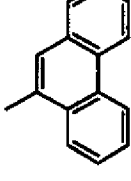
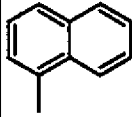
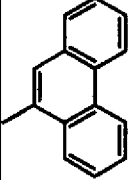
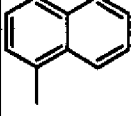
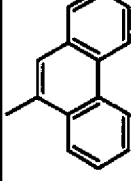
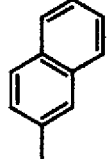
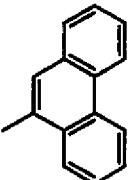
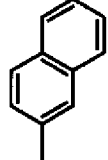
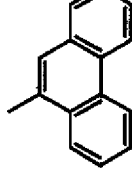
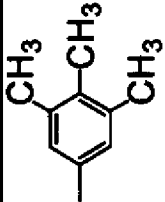
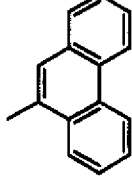
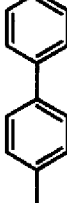
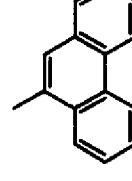
【0060】

前記一般式(I)で表される本発明の2，7-ジアミノナフタレン化合物の好ましい具体例を以下の表-1（No. 1～No. 94）に示すが、これらに限定するものではない。

【0061】

【表 1】

表一1

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
1				
2				
3				
4				
5				
6				

【0062】

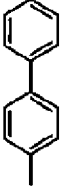
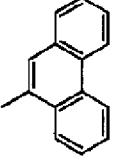
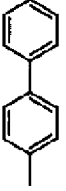
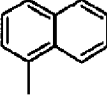
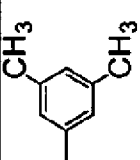
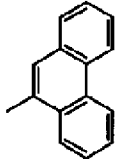
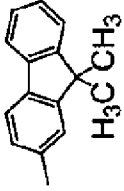
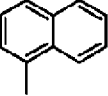
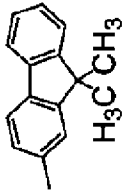
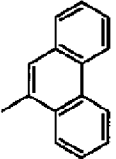
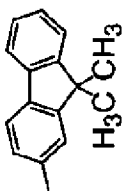
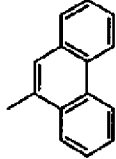
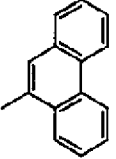
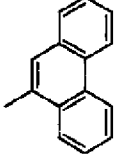
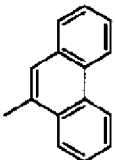
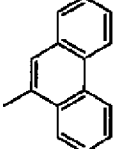
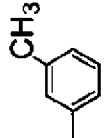
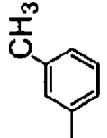
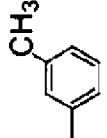
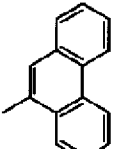
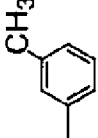
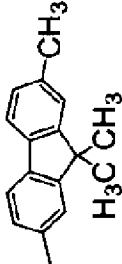
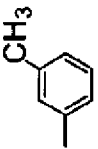
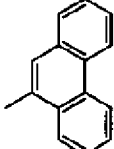
10

20

30

40

【表 2】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
7				
8				
9				
10				
11				
12				

【 0 0 6 3 】

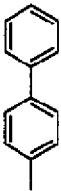
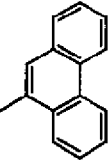
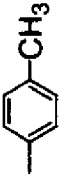
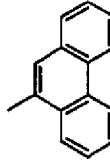
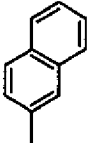
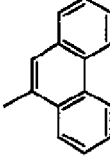

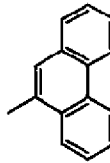
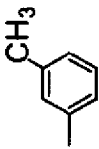
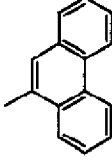
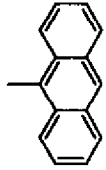
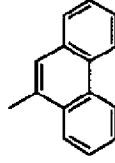
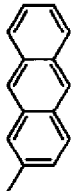
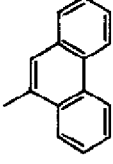
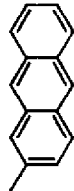
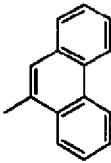
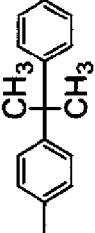
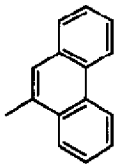
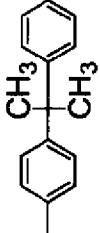
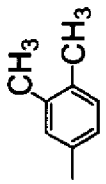
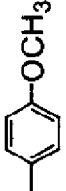
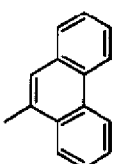
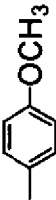
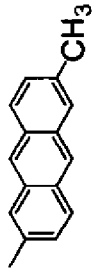
10

20

30

40

【表 3】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
13				
14				
15				
16				
17				
18				

【 0 0 6 4 】

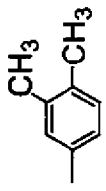
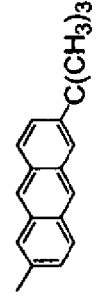
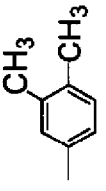
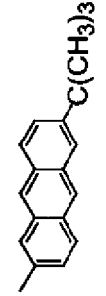
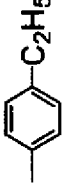
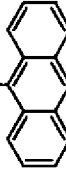

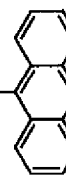
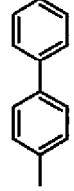
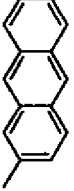
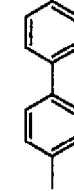
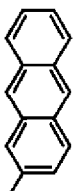
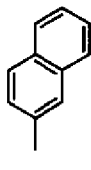
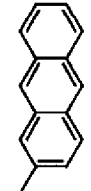
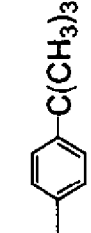
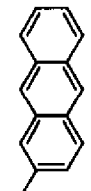
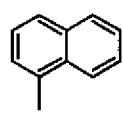
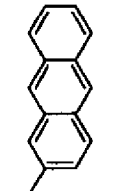
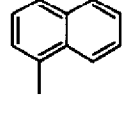
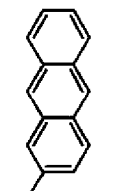
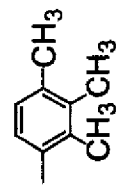
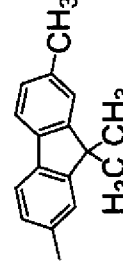
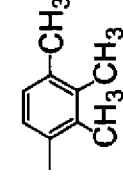
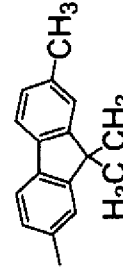
10

20

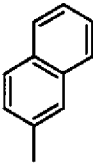
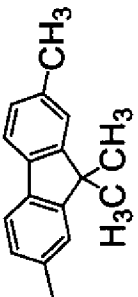
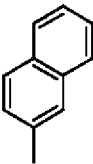
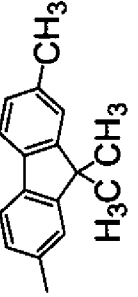


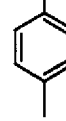
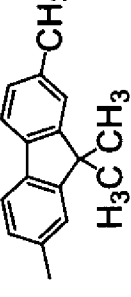
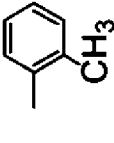
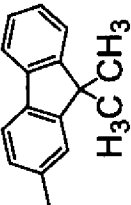
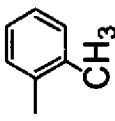
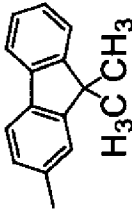
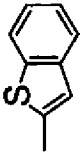
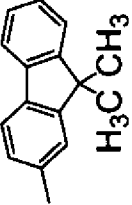

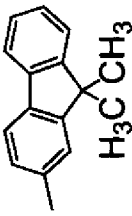
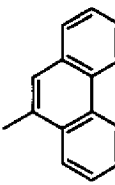
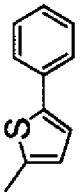
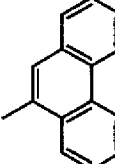
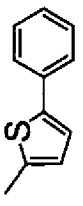
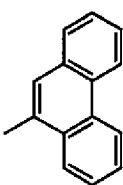
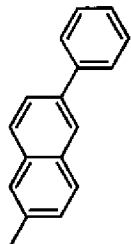
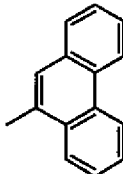
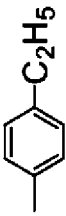
30

40

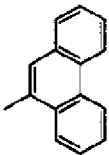
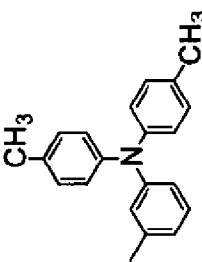
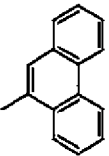
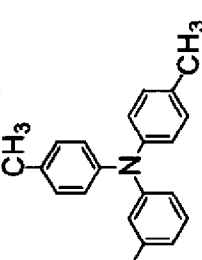
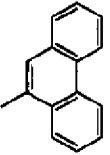
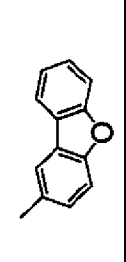
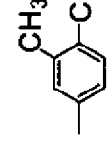
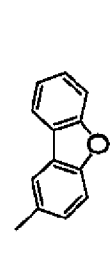

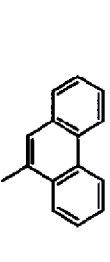
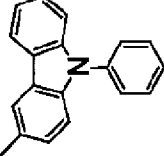
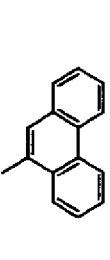
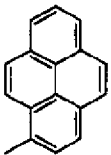
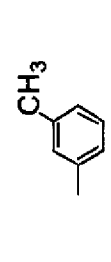
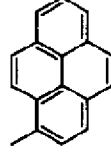
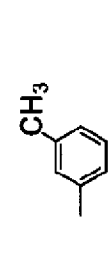
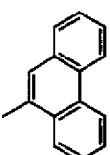
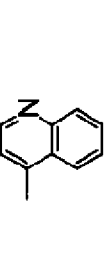
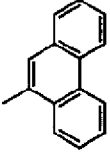
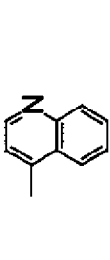
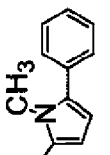
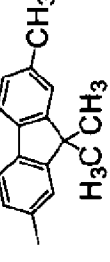
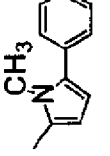
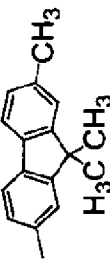
【表 4】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
19				
20				
21				
22				
23				
24				

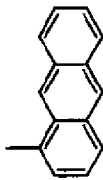
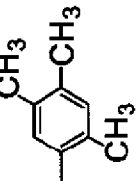
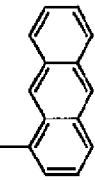
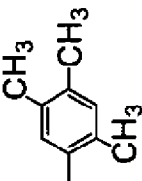
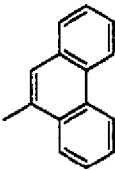
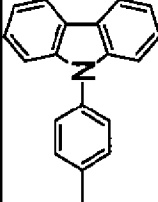
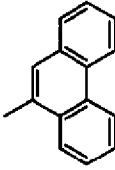
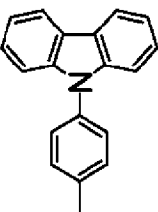

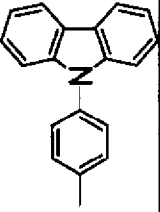

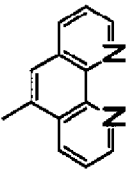
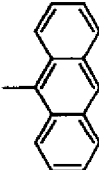

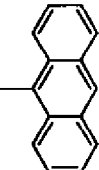
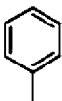
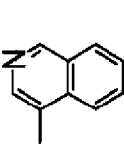
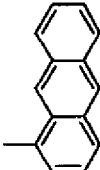
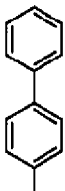
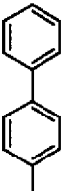
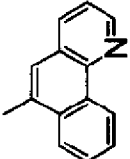
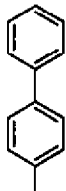
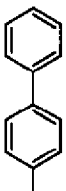
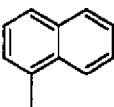
【表 5】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
25				
26				
27				
28				
29				
30				

【表 6】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
31				
32				
33				
34				
35				
36				

【表 7】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
37				
38				
39				
40				
41				
42				

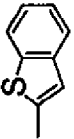
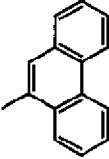
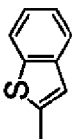
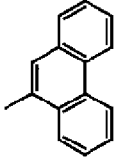
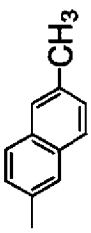
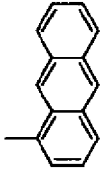
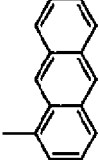
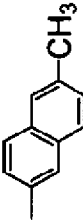

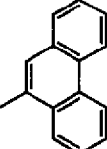
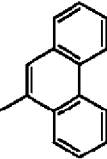

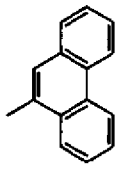
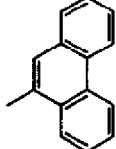
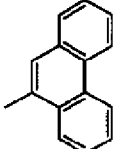
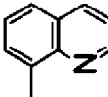
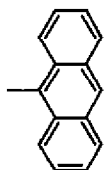
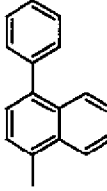
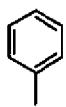

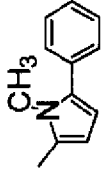
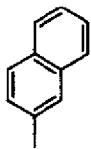
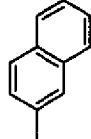
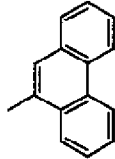
10

20

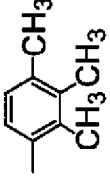
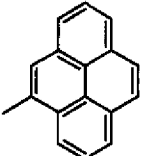
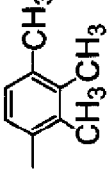
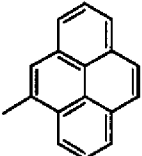

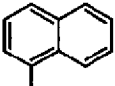
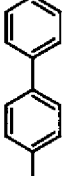

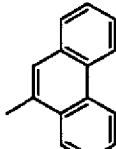
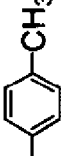
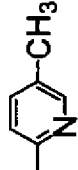
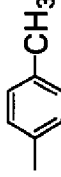
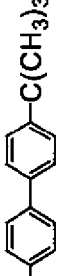
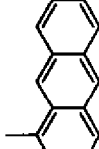
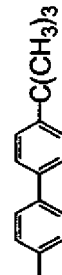
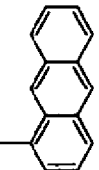
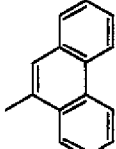

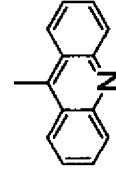

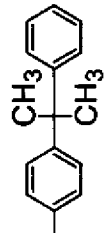
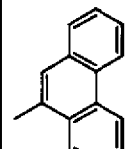
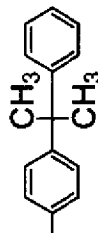
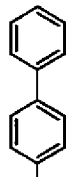
30

40

【表 8】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
43				
44				
45				
46				
47				
48				

【表 9】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
49				
50				
51				
52				
53				
54				

【0070】

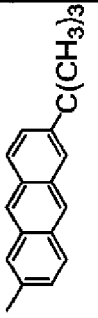

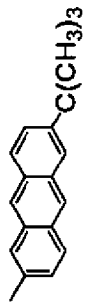

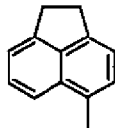
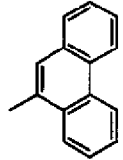
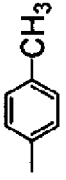
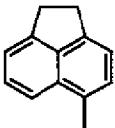
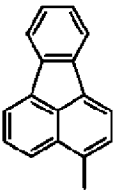
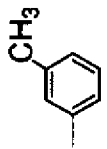
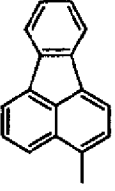
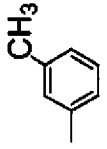
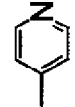
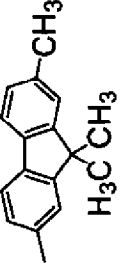
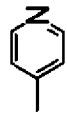
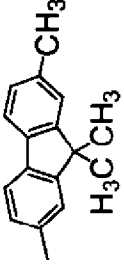
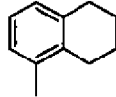
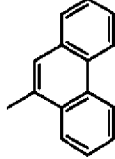
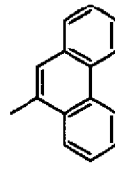
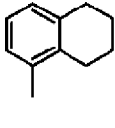

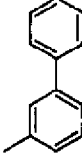

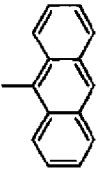
10

20

30

40

【表 10】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
55				
56				
57				
58				
59				
60				

【0071】

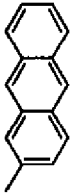
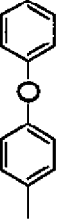
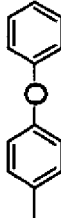
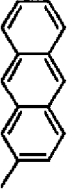
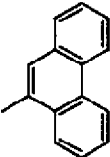

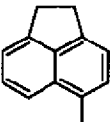

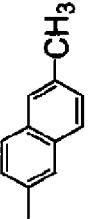
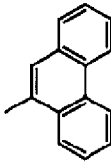
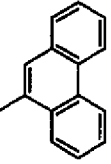
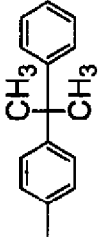
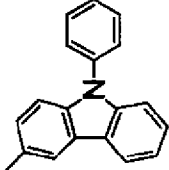
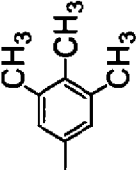
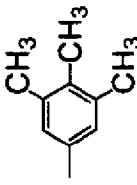
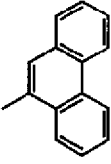
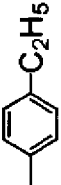
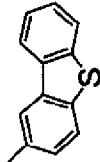
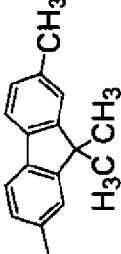
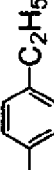
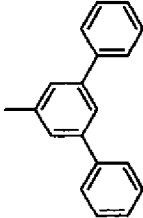
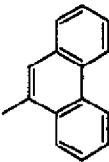
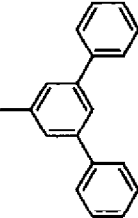
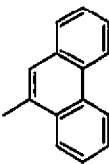
10

20

30

40

【表 1 1】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
61				
62				
63				
64				
65				
66				

【0 0 7 2】

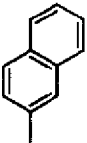
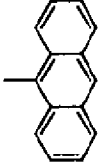
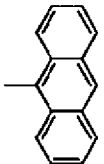

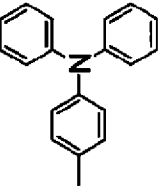
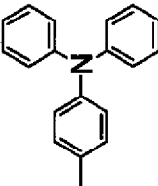
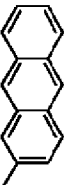
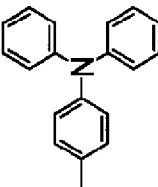
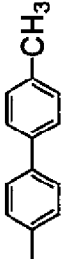
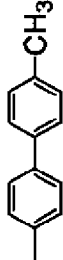
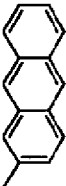
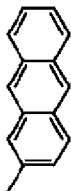
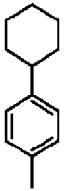
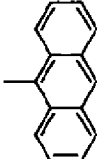
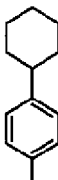
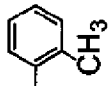
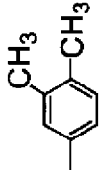
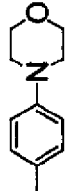
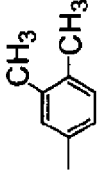

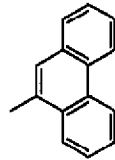
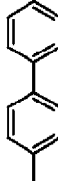
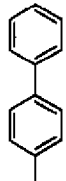
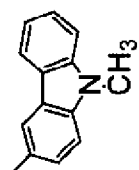
10

20

30

40

【表 1 2】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
67				
68				
69				
70				
71				
72				

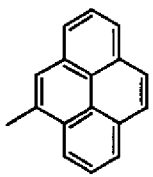

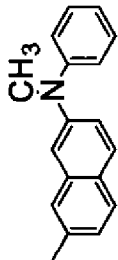

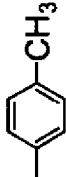
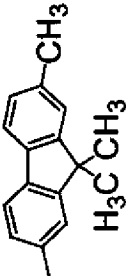
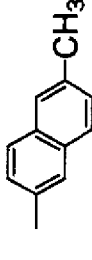
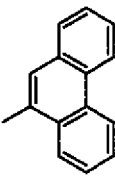
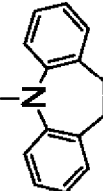
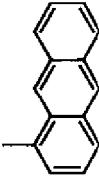
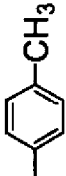
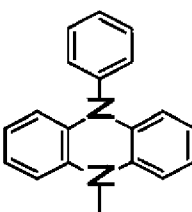
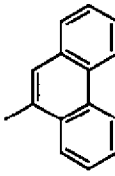
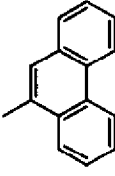
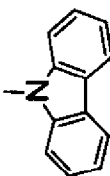
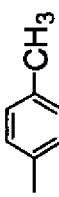
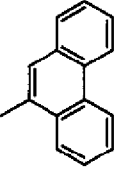
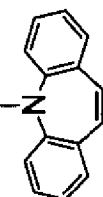
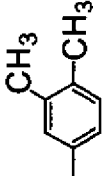
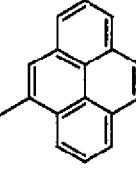
10

20

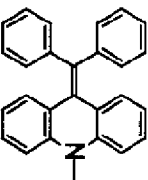
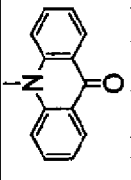
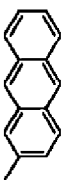
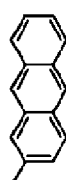
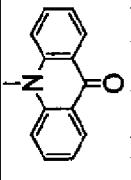
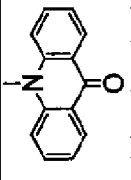
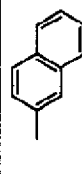
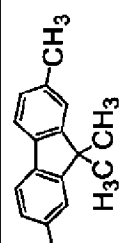
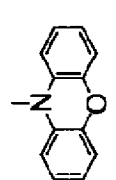
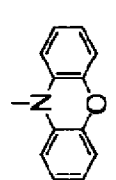
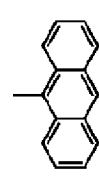
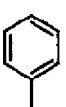
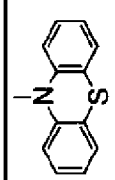
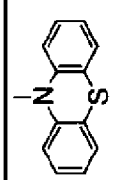
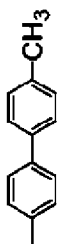
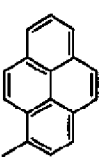
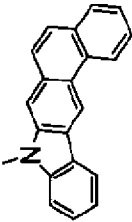
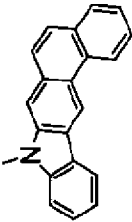

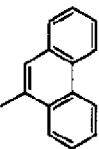
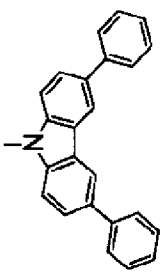
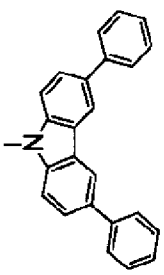

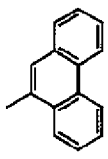
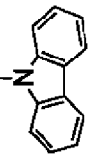
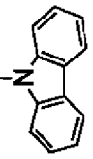
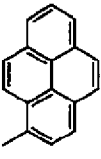

30

40

【表 1 3】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
73				
74				
75				
76				
77				
78				

【表 1 4】

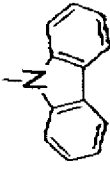
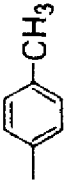
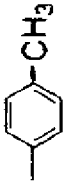
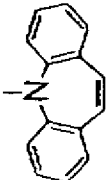
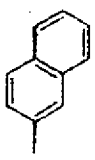

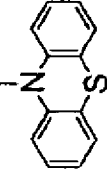
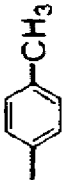

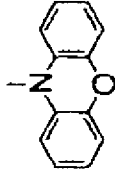
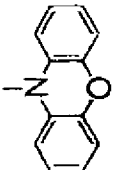
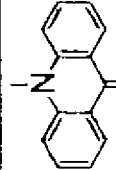
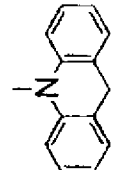
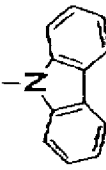
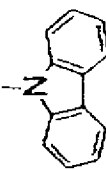
番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
79				
80				
81				
82				
83				
84				
85				

10

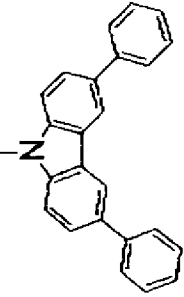
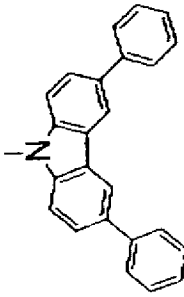
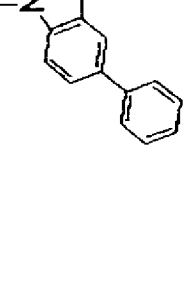
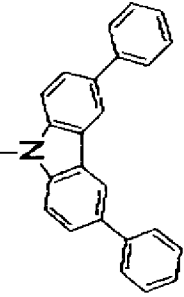
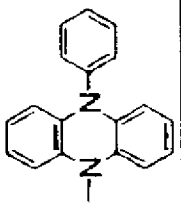
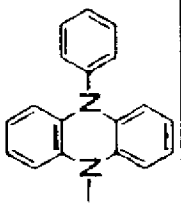
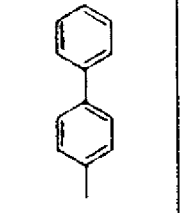
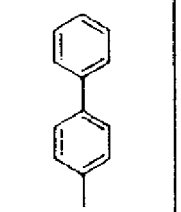
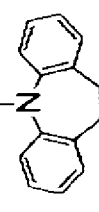
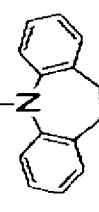

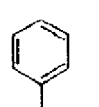
20

30

【表 1 5】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
86				
87				
88				
89				
90				
91				

【表 1 6】

番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴
92				
93				
94				

【0077】

前記一般式（I）で表される本発明の2，7-ジアミノナフタレン化合物は、高い電荷輸送性を有するため、電荷輸送性材料として電子写真感光体、有機電界発光素子、光電変換素子、有機太陽電池、有機整流素子等に好適に使用できる。特に正孔輸送性に優れることから電子輸送性の化合物として好適である。

10

20

30

40

50

【0078】

また、前記一般式（I）で表される本発明の2，7-ジアミノナフタレン化合物を用いることにより、耐熱性に優れ、長期間安定に駆動（発光）する有機電界発光素子が得られるため、有機電界発光素子材料としても好適である。

【0079】

次に、このような本発明の2，7-ジアミノナフタレン化合物を用いて構成される本発明の有機電界発光素子について説明する。

本発明の有機電界発光素子は、陽極と陰極との間に発光層を有し、前記一般式（I）で表される本発明の2，7-ジアミノナフタレン化合物を含有する層を有することを特徴とする。

10

本発明の有機電界発光素子において、この2，7-ジアミノナフタレン化合物は、有機電界発光素子におけるいずれの層に含有されていても良いが、好ましくは陽極と発光層との間の正孔輸送性の層に含有される。

【0080】

本発明の有機電界発光素子において、同一の層内に2種以上の前記2，7-ジアミノナフタレン化合物が含有されていても良く、また、2以上の層にこの2，7-ジアミノナフタレン化合物が含有されていても良い。このような場合、これらの層に含有される2，7-ジアミノナフタレン化合物は同一のものであっても異なるものであっても良い。

【0081】

なお、本発明の有機電界発光素子において、陽極-発光層間の層が、1つの場合にはこれを「正孔輸送層」と称し、2つ以上の場合には陽極に接している層を「陽極バッファ層」、それ以外の層を総称して「正孔輸送層」と称す。

20

【0082】

以下に、図面を参照して、前記一般式（I）で表される本発明の2，7-ジアミノナフタレン化合物を正孔輸送層に含有する場合を例に、本発明の有機電界発光素子の実施の形態を詳細に説明する。

【0083】

図1～図3は本発明の有機電界発光素子の構造例を模式的に示す断面図であるが、本発明の有機電界発光素子は、何ら図示のものに限定されるものではない。図1～図3において、1は基板、2は陽極、3は陽極バッファ層、4は正孔輸送層、5は発光層、6は電子輸送層、7は陰極を各々表わす。

30

【0084】

基板1は有機電界発光素子の支持体となるものであり、石英やガラスの板、金属板や金属箔、プラスチックフィルムやシートなどが用いられる。特にガラス板や、ポリエステル、ポリメタクリレート、ポリカーボネート、ポリスルホンなどの透明な合成樹脂の板が好ましい。合成樹脂基板を使用する場合にはガスバリア性に留意する必要がある。基板のガスバリア性が小さすぎると、基板を通過した外気により有機電界発光素子が劣化することがあるので好ましくない。このため、合成樹脂基板を用いる場合には、その少なくとも片面に緻密なシリコン酸化膜等を設けてガスバリア性を確保する方法も好ましい方法の一つである。

40

【0085】

基板1上には陽極2が設けられる。陽極2は正孔輸送層4への正孔注入の役割を果たすものである。この陽極2は、通常、アルミニウム、金、銀、ニッケル、パラジウム、白金等の金属、インジウムおよび／またはスズの酸化物などの金属酸化物、ヨウ化銅などのハロゲン化金属、カーボンブラック、あるいは、ポリ（3-メチルチオフェン）、ポリピロール、ポリアニリン等の導電性高分子などにより構成される。陽極2は通常、スパッタリング法、真空蒸着法などにより形成されることが多い。また、銀などの金属微粒子、ヨウ化銅などの微粒子、カーボンブラック、導電性の金属酸化物微粒子、導電性高分子微粉末などを用いて陽極2を形成する場合には、適当なバインダー樹脂溶液に分散し、基板1上に塗布することにより陽極2を形成することもできる。更に、導電性高分子を用いて陽極2

50

を形成する場合には、電解重合により直接基板 1 上に薄膜を形成したり、基板 1 上に導電性高分子溶液を塗布して陽極 2 を形成することもできる (Appl. Phys. Lett., 60 巻, 27 11 頁, 1992 年)。陽極 2 は異なる材料からなる層を積層して形成された積層構造を有するものであっても良い。

【0086】

陽極 2 の厚みは、必要とする透明性により異なる。透明性が必要とされる場合は、可視光の透過率を、通常 60 % 以上、好ましくは 80 % 以上とすることが望ましく、この場合、陽極 2 の厚みの下限は通常 5 nm 好ましくは 10 nm であり、上限は通常 1000 nm 好ましくは 500 nm である。不透明で良い場合は陽極 2 の厚みは任意であり、例えば金属等で形成して基板 1 を兼ねても良い。

10

【0087】

図 1 の有機電界発光素子では、陽極 2 の上に正孔輸送層 4 が設けられている。

正孔輸送層 4 の材料に要求される条件としては、陽極 2 からの正孔注入効率がよく、注入された正孔を効率よく輸送することが可能で、かつ、発光層 5 に正孔を効率よく受け渡しすることができる材料であることが必要である。そのためには正孔移動度が大きく、適度なイオン化ポテンシャルを有し、可視光の光に対して透明性が高く、さらに、容易には結晶化しない安定な非晶質膜を形成することができ、トラップとなる不純物が製造時や使用時に発生しにくいことが要求される。従って、4.9 ~ 5.3 eV 程度のイオン化ポテンシャルを有し、可視光領域の吸収が小さく、フロンティア電子軌道が広く非局在化し、さらに、高いガラス転移温度 T_g を有する材料が好ましい。

20

【0088】

前記一般式 (I) で表される本発明の 2,7-ジアミノナフタレン化合物はこれらの条件を十分に満たすため、本発明の有機電界発光素子においては、本発明の 2,7-ジアミノナフタレン化合物を陽極 2 と後述する発光層 5 との間に設けられる正孔注入・輸送性の層形成材料として使用することが好ましい。

【0089】

なお、イオン化ポテンシャルは物質の HOMO (最高被占分子軌道) レベルにある電子を真空準位に放出するのに必要なエネルギーで定義され、光電子分光法で直接測定されるか、あるいは電気化学的に測定した酸化電位を基準電極に対して補正しても求められる。後者の方法の場合は、例えば、飽和甘コウ電極 (SCE) を基準電極として用いたとき、

30

$$\text{イオン化ポテンシャル} = \text{酸化電位 (vs.SCE)} + 4.3 \text{ eV}$$

で表される ("Molecular Semiconductors", Springer-Verlag, 1985 年, 98 頁)。

【0090】

一般式 (I) で表される本発明の 2,7-ジアミノナフタレン化合物を含む正孔輸送層 4 は、塗布法あるいは真空蒸着法により前記陽極 2 上に形成される。塗布法による場合には、本発明の 2,7-ジアミノナフタレン化合物を溶媒に溶解し、さらに必要によりこれに正孔のトラップにならないバインダー樹脂や塗布性改良剤などの添加剤とを添加して調製した塗布溶液を用い、公知の湿式成膜法により陽極 2 上に層形成すれば良い。ここで、湿式成膜法としては、スプレー法、印刷法、スピコート法、ディップコート法、ダイコート法などの通常の塗布法や、インクジェット法、スクリーン印刷法など各種印刷法等が

40

【0091】

バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル等が用いられる。正孔輸送層 4 に占めるバインダー樹脂量が多いと正孔移動度が低下するので、バインダー樹脂は正孔輸送層 4 中の含有量が 50 重量 % 以下となるように用いるのが好ましい。

【0092】

真空蒸着法による場合には、本発明の 2,7-ジアミノナフタレン化合物を収容したルツボを真空容器内に設置し、陽極 2 をルツボに対向させて配置する。この真空容器内を真空ポンプで 10^{-4} Pa 程度にまで排気した後、ルツボを加熱して 2,7-ジアミノナフ

50

タレン化合物を蒸発させ、発生した蒸気を陽極 2 上に蒸着させる。

【0093】

なお、正孔輸送層 4 は、本発明の 2, 7-ジアミノナフタレン化合物の 1 種を単独で使用して形成しても良く、必要に応じて 2 種以上を混合して形成しても良い。また、本発明の素子の性能を損なわない範囲で本発明の 2, 7-ジアミノナフタレン化合物以外の芳香族アミン等を含有していても良い。正孔輸送層 4 には、さらに、アクセプタとして、芳香族カルボン酸の金属錯体および／または金属塩（特開平 4-320484 号公報）、ベンゾフェノン誘導体およびチオベンゾフェノン誘導体（特開平 5-295361 号公報）、フラーレン類（特開平 5-331458 号公報）等を $10^{-3} \sim 10$ 重量 % の濃度でドーピングして、フリーキャリアとしての正孔を生成させても良い。このようにすると一般に駆動電圧を低くすることができ、さらに、本発明の 2, 7-ジアミノナフタレン化合物が有する、優れた特性を損なわない限りにおいて、この正孔輸送層 4 には公知の正孔輸送材料を併用しても良い。

【0094】

この公知の正孔輸送性材料としては、例えば、1,1-ビス（4-ジ-p-トリルアミノフェニル）シクロヘキサン、4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニルで代表される 2 個以上の 3 級アミンを含み 2 個以上の縮合芳香族環が窒素原子に置換した芳香族アミン（特開平 5-234681 号公報）、トリフェニルベンゼンの誘導体でスターバースト構造を有する芳香族トリアミン（米国特許第 4,923,774 号）、N,N'-ジフェニル-N,N'-ビス（3-メチルフェニル）ビフェニル-4,4'-ジアミン等、ピレニル基に芳香族ジアミノ基が複数個置換した化合物、スチリル構造を有する芳香族ジアミン（特開平 4-290851 号公報）、チオフェン基で芳香族 3 級アミンユニットを連結したもの（特開平 4-304466 号公報）、スターバースト型芳香族トリアミン（特開平 4-308688 号公報）、フルオレン基で 3 級アミンを連結したもの（特開平 5-25473 号公報）、トリアミン化合物（特開平 5-23945 号公報）、ビスジピリジルアミノビフェニル、N,N,N'-トリフェニルアミン誘導体（特開平 6-1972 号公報）、フェノキサジン構造を有する芳香族ジアミン（特開平 7-138562 号公報）、ジアミノフェニルフェナントリジン誘導体（特開平 7-252474 号公報）、シラザン化合物（米国特許第 4,950,950 号公報）、シラナミン誘導体（特開平 6-49079 号公報）、ホスファミン誘導体（特開平 6-25659 号公報）などが挙げられる。これらの化合物は、単独で用いても良いし、必要に応じて 2 種以上を混合して用いても良い。

【0095】

正孔輸送層 4 中の本発明の 2, 7-ジアミノナフタレン化合物の含有量は該層中 50 重量 % 以上であることが好ましく、80 重量 % 以上であることがより好ましい。

【0096】

正孔輸送層 4 の膜厚は、通常 5 nm 以上、好ましくは 10 nm 以上であり、また通常 300 nm 以下、好ましくは 100 nm 以下である。この様に薄い膜を一様に形成するためには、一般に真空蒸着法がよく用いられる。

【0097】

図 1 に示す素子において、正孔輸送層 4 の上には発光層 5 が設けられる。発光層 5 は、電界を与えられた電極間において、陽極 2 から注入されて正孔輸送層 4 を移動する正孔と、陰極 7 から注入されて電子輸送層 6 を移動する電子との再結合により励起されて強い発光（蛍光または燐光）を示す発光性化合物を主成分として形成される。この発光性化合物は、安定な薄膜形状を有し、固体状態で高い（発光の）量子収率を示し、正孔および／または電子を効率良く輸送することができるものであることが必要である。更に電気化学的かつ化学的に安定であり、トラップとなる不純物が製造時や使用時に発生しにくい化合物であることが要求される。

【0098】

このような条件を満たし、蛍光を示す発光層を形成する化合物としては、8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体などの錯体化合物（特開昭 59-194393 号公報）、10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリンの錯体化合物（特開平 6-322362 号公報）、ビススチリルベンゼン誘導体（特開平 1-245087 号公報、同 2-222484 号公報）、ビススチリルアリーレン誘導体（特

10

20

30

40

50

開平2-247278号公報)、(2-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾールの金属錯体(特開平8-315983号公報)、シロール誘導体等が挙げられる。また、前述の正孔輸送性材料のうち、発光性を有する芳香族アミン系化合物も発光層材料として用いることができる。これらの発光層材料は、通常は真空蒸着法により正孔輸送層4上に積層される。

【0099】

素子の発光効率を向上させるとともに発光色を変える目的で、例えば、8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体をホスト材料として、クマリン等のレーザー用蛍光色素をドーピングすること(J. Appl. Phys., 65巻, 3610頁, 1989年)等が行われている。このドーピング手法は、発光層5にも適用でき、ドーピング材料としては、クマリン以外にも各種の蛍光色素が使用できる。青色発光を与える蛍光色素としては、ペリレン、ピレン、アントラセン、クマリンおよびそれらの誘導体等が挙げられる。緑色蛍光色素としては、キナクリドン誘導体、クマリン誘導体等が挙げられる。黄色蛍光色素としては、ルブレン、ペリミドン誘導体等が挙げられる。赤色蛍光色素としては、DCM系化合物、ベンゾピラン誘導体、ローダミン誘導体、ベンゾチオキサテン誘導体、アザベンゾチオキサテン等が挙げられる。

【0100】

上記のドーピング用蛍光色素以外にも、ホスト材料に応じて、レーザー研究, 8巻, 694頁, 803頁, 958頁(1980年); 同9巻, 85頁(1981年)、に列挙されている蛍光色素などを、発光層用のドーピング材料として使用することができる。

【0101】

ホスト材料に対して上記蛍光色素がドーピングされる量は、 10^{-3} 重量%以上が好ましく、また10重量%以下が好ましい。ドーピング量が 10^{-3} 重量%未満では素子の発光効率向上に寄与できない場合があり、10重量%を超えると濃度消光が起き、発光効率の低下に至る可能性がある。

【0102】

一方、燐光発光を示す発光層は、通常、燐光性ドーパントとホスト材料を含んで形成される。燐光性ドーパントとしては、例えば周期表7ないし11族から選ばれる金属を含む有機金属錯体が挙げられ、該金属錯体のT1(最低励起三重項準位)より高いT1を有する電荷輸送性有機化合物をホスト材料として使用することが好ましい。

【0103】

周期表7ないし11族から選ばれる金属を含む燐光性有機金属錯体における、該金属として好ましくは、ルテニウム、ロジウム、パラジウム、銀、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、および金が挙げられる。

【0104】

燐光発光を示す発光層に使用されるホスト材料としては、蛍光発光を示す発光層に使用されるホスト材料として前述した材料の他に、4, 4'-N, N'-ジカルバゾールビフェニルなどのカルバゾール誘導体(WO 00/70655号公報)、トリス(8-ヒドロキシキノリン)アルミニウム(USP 6, 303, 238号公報)、2, 2', 2''-(1, 3, 5-ベンゼントリル)トリス[1-フェニル-1H-ベンズイミダゾール](Appl. Phys. Lett., 78巻, 1622項, 2001)、ポリビニルカルバゾール(特開2001-257076号公報)等が挙げられる。

【0105】

さらに本発明の有機電界発光素子における発光層5は、ホスト材料および燐光性ドーパントと共に、前述の蛍光色素を含有していてもよい。

【0106】

発光層5中にドーパントとして含有される有機金属錯体の量は、0.1重量%以上が好ましく、また30重量%以下が好ましい。この量が0.1重量%未満では素子の発光効率向上に寄与できない場合があり、30重量%を超えると有機金属錯体同士が2量体を形成する等の理由で濃度消光が起き、発光効率の低下に至る可能性がある。

【0107】

10

20

30

40

50

燐光発光を示す発光層における燐光性ドーパントの量は、従来の蛍光（1重項）を用いた素子において、発光層に含有される蛍光性色素（ドーパント）の量より、若干多い方が好ましい傾向がある。また燐光性ドーパントと共に蛍光色素が発光層中に含有される場合、該蛍光色素の量は、0.05重量%以上が好ましく、0.05重量%以上がより好ましく、また10重量%以下が好ましく、2重量%以下がより好ましい。

【0108】

発光層5の膜厚は、通常3nm以上、好ましくは5nm以上であり、また通常200nm以下、好ましくは100nm以下である。

【0109】

発光層5も正孔輸送層4と同様の方法で形成することができるが、通常は真空蒸着法が 10
用いられる。

以下に、上述の蛍光色素および／または燐光色素（燐光性ドーパント）を発光層のホスト材料にドーピングする方法を説明する。

【0110】

塗布の場合は、前記発光層ホスト材料と、ドーピング色素、さらに必要により、電子のトラップや発光の消光剤とならないバインダー樹脂や、レベリング剤等の塗布性改良剤などの添加剤を添加し溶解した塗布溶液を調製し、スピンコート法などの方法により正孔輸送層4上に塗布し、乾燥して発光層5を形成する。バインダー樹脂としては、ポリカーボネート、ポリアリレート、ポリエステル等が挙げられる。バインダー樹脂は添加量が多いと正孔／電子移動度を低下させるので、少ない方が望ましく、通常発光層5中の含有量で5 20
0重量%以下が好ましい。

【0111】

真空蒸着法の場合には、前記ホスト材料を真空容器内に設置されたルツボに入れ、ドーピング色素を別のルツボに入れ、真空容器内を適当な真空ポンプで 10^{-4} Pa程度にまで排気した後、各々のルツボを同時に加熱してホスト材料と色素を蒸発させ、ルツボと向かい合って置かれた基板上に層を形成する。また、他の方法として、上記の材料を予め所定比で混合したものを同一のルツボを用いて蒸発させても良い。

【0112】

上記各ドーパントが発光層5中にドーピングされる場合、発光層5の膜厚方向において均一にドーピングされていても良く、膜厚方向において濃度分布があっても構わない。例えば、正孔輸送層4側の界面近傍にのみドーピングしたり、逆に、陰極7側の界面近傍にのみドーピングしても良い。 30

【0113】

なお、発光層5は、本発明の性能を損なわない範囲で上記以外の成分を含んでいてもよい。

【0114】

図1に示す素子において、発光層5の上に設けられる陰極7は、直接あるいは任意の層を介して発光層5に電子を注入する役割を果たす。陰極7として用いられる材料は、前記陽極2に使用される材料を用いることが可能であるが、効率良く電子注入を行なうには、仕事関数の低い金属が好ましく、スズ、マグネシウム、インジウム、カルシウム、アルミニウム、銀等の適当な金属またはそれらの合金が用いられる。具体例としては、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、アルミニウム-リチウム合金等の低仕事関数の合金電極が挙げられる。 40

【0115】

陰極7の膜厚は通常、陽極2と同様である。低仕事関数金属から成る陰極7を保護する目的で、この上に更に、仕事関数が高く大気に対して安定な金属層を積層することは素子の安定性を増すため好ましい。この目的のために、アルミニウム、銀、銅、ニッケル、クロム、金、白金等の金属が使われる。

【0116】

正孔注入の効率を更に向上させ、かつ、有機層全体の陽極2への付着力を改善させる目 50

的で、図2, 3に示す如く、正孔輸送層4と陽極2との間に陽極バッファ層3を挿入することも行われている。陽極バッファ層3を挿入することで、初期の素子の駆動電圧が下がると同時に、素子を定電流で連続駆動した時の電圧上昇も抑制される効果がある。陽極バッファ層3に用いられる材料に要求される条件としては、陽極2とのコンタクトが良く均一な薄膜を形成することができ、熱的に安定、すなわち、融点およびT_gが高く、融点としては300℃以上、T_gとしては100℃以上が要求される。更に、イオン化ポテンシャルが低く陽極2からの正孔注入が容易なこと、正孔移動度が大きいことが挙げられる。

【0117】

この目的のために、これまでに、銅フタロシアニン等のフタロシアニン化合物（特開昭63-295695号公報）、ポリアニリン（Appl.Phys.Lett.,64巻、1245頁,1994年）、ポリチオフェン（Optical Materials,9巻、125頁、1998年）等の有機化合物や、スパッタ・カーボン膜（Synth.Met.,91巻、73頁、1997年）や、バナジウム酸化物、ルテニウム酸化物、モリブデン酸化物等の金属酸化物（J.Phys.D,29巻、2750頁、1996年）が報告されている。

【0118】

また、正孔注入・輸送性の低分子有機化合物と電子受容性化合物を含有する層（特開平11-251067号公報、特開2000-159221号公報等に記載）や、芳香族アミノ基等を含有する非共役系高分子化合物に、必要に応じて電子受容性化合物をドーピングした層（特開平11-135262号公報、特開平11-283750号公報、特開2000-36390号公報、特開2000-150168号公報、特開平2001-223084号公報、およびWO97/33193号公報など）、またはポリチオフェン等の導電性ポリマーを含む層（特開平10-92584号公報）なども挙げられるが、これらに限定されるものではない。

【0119】

上記陽極バッファ層3材料としては、低分子・高分子いずれの化合物を用いることも可能である。

【0120】

陽極バッファ層3の場合も、正孔輸送層4と同様にして薄膜形成可能であるが、無機物の場合には、さらに、スパッタ法や電子ビーム蒸着法、プラズマCVD法が用いられる。

【0121】

以上の様にして形成される陽極バッファ層3の膜厚は、低分子化合物を用いて形成される場合、下限は通常3nm、好ましくは10nm程度であり、上限は通常100nm、好ましくは50nm程度である。また高分子化合物を用いて形成される陽極バッファ層3の膜厚の下限は通常5nm、好ましくは10nm程度であり、上限は通常1000nm、好ましくは500nm程度である。

【0122】

素子の発光効率を更に向上させることを目的として、図3に示す如く、発光層5と陰極7の間に電子輸送層6を設けても良い。電子輸送層6は、電界を与えられた電極間において陰極7から注入された電子を効率良く発光層5の方向に輸送することができる化合物より形成される。

【0123】

電子輸送層6に用いられる電子輸送性化合物としては、陰極7からの電子注入効率が高く、かつ、高い電子移動度を有し注入された電子を効率良く輸送することができる化合物であることが必要である。

【0124】

このような条件を満たす材料としては、8-ヒドロキシキノリンのアルミニウム錯体などの錯体化合物（特開昭59-194393号公報）、10-ヒドロキシベンゾ[h]キノリンの錯体化合物、オキサジアゾール誘導体、ジスチリルビフェニル誘導体、シロール誘導体、3-または5-ヒドロキシフラボン錯体化合物、ベンズオキサゾール錯体化合物、ベンゾチアゾール錯体化合物、トリスベンズイミダゾリルベンゼン（米国特許第5,645,948号）、キノキサリ

10

20

30

40

50

ン化合物（特開平6-207169号公報）、フェナントロリン誘導体（特開平5-331459号公報）、2-t-ブチル-9,10-N,N'-ジシアノアントラキノンジイミン、n型水素化非晶質炭化シリコン、n型硫化亜鉛、n型セレン化亜鉛などが挙げられる。

【0125】

電子輸送層6の膜厚は、通常5nm以上、好ましくは10nm以上であり、また通常200nm以下、好ましくは100nm以下である。

【0126】

電子輸送層6は、正孔輸送層4と同様にして塗布法あるいは真空蒸着法により発光層5上に積層することにより形成される。通常は、真空蒸着法が用いられる。

【0127】

更に、陰極7と図1、2の発光層5との界面、または陰極7と図3の電子輸送層6との界面に、LiF、MgF₂、Li₂Oなどの極薄絶縁膜（膜厚0.1～5nm）を挿入することも、素子の効率を向上させる有効な方法である（Appl.Phys.Lett.,70巻,152頁,1997年；特開平10-74586号公報；IEEE Trans.Electron.Devices,44巻,1245頁,1997年）。

【0128】

本発明の有機電界発光素子は、上述した各層の他にも、陽極と陰極との間に任意の層を有していても良い。例えば、発光層で再結合しなかった正孔が陰極側へ通り抜けるのを阻止するべく、発光層の陰極側界面に接するように正孔阻止層を設けたり、電子輸送層や正孔輸送層を、各々複数の層を積層することにより構成してもよい。また層構成についても、図1とは逆の構造、即ち、基板上1に陰極7、発光層5、正孔輸送層4、陽極2の順に積層することも可能であり、既述したように少なくとも一方が透明性の高い2枚の基板の間に本発明の有機電界発光素子を設けることも可能である。同様に、図2、3に示した前記各層構成とは逆の構造に積層することも可能である。

【0129】

本発明の有機電界発光素子は、有機電界発光素子が、単一の素子、アレイ状に配置された構造からなる素子、陽極と陰極がX-Yマトリックス状に配置された構造のいずれにおいても適用することができる。

【0130】

このような有機電界発光素子によれば、正孔輸送層4に、正孔注入輸送能が高く、かつ、発光層界面との障壁も少なく、さらに、高いTgを有し、容易には結晶化しない本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物を含有させることにより、電流効率および発光効率が高く、かつ、低電圧駆動が可能で駆動安定性、耐熱性に優れた有機電界発光素子が提供される。

【0131】

なお、本発明に係る前記一般式(1)で表される2,7-ジアミノナフタレン化合物は、基本的に正孔注入・輸送性の層には使用可能であるので、図1～図3における正孔輸送層に限らず、陽極と発光層との間に設けられるいずれの層にも採用することが可能である。

【実施例】

【0132】

次に、実施例及び比較例を挙げて本発明をより具体的に説明するが、本発明はその要旨を超えない限り、以下の実施例の記載に限定されるものではない。

【0133】

実施例1：例示化合物(1)の合成

以下の構造式に示す本発明の2,7-ジアミノナフタレン化合物（例示化合物(1)：表-1のNo.1の化合物）を合成した。

【0134】

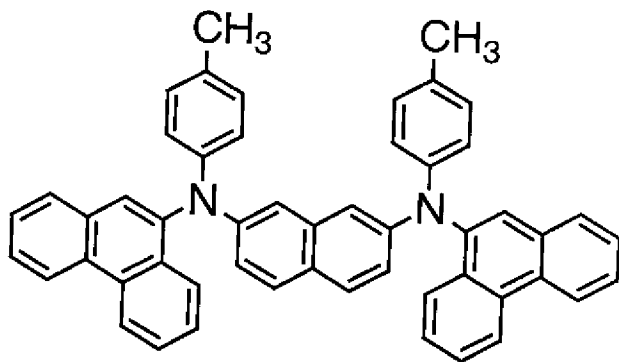
10

20

30

40

【化 1 3】

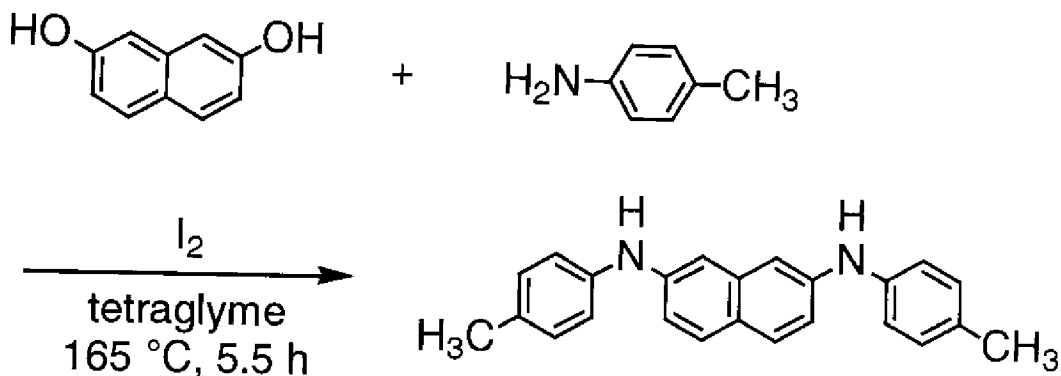


10

【0 1 3 5】

1) N, N'-ビス(4-メチルフェニル)-2, 7-ジアミノナフタレンの合成

【化 1 4】



20

【0 1 3 6】

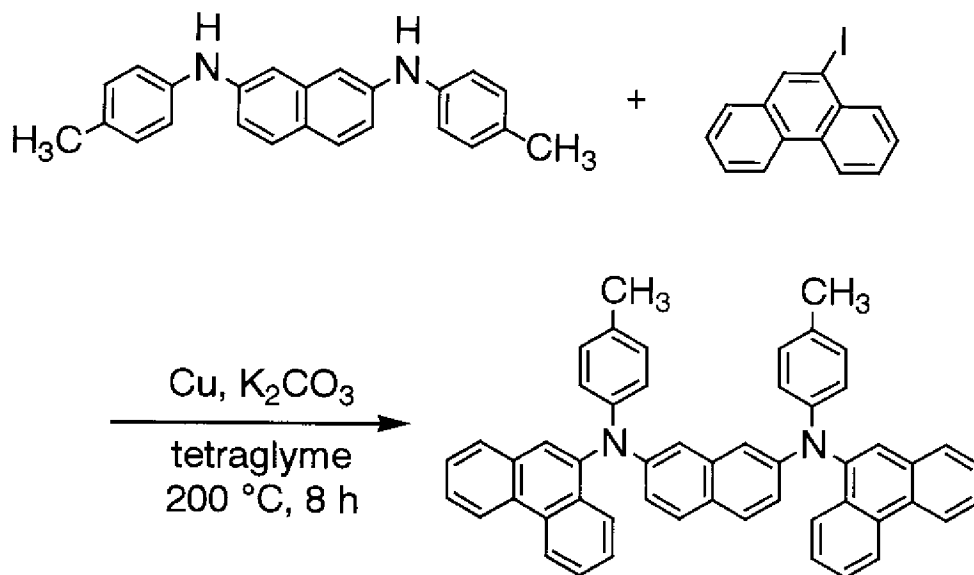
2, 7-ジヒドロキシナフタレン16.3g(0.102mol)、p-トルイジン27.3g(0.245mol)、およびヨウ素1.3g(0.005mol)にテトラエチレングリコールジメチルエーテル4mLを加え、窒素雰囲気下、165℃で5.5時間反応させた。反応終了後、反応液にエタノール150mLを加え、10分間還流させた。放冷後、得られた結晶を濾過により回収することにより、白色針状結晶27.5g(0.081mol,収率80%)を得た。

30

【0 1 3 7】

2) N, N'-ビス(4-メチルフェニル)-N, N'-ジ(9-フェナントリル)-2, 7-ジアミノナフタレンの合成

【化 1 5】



10

【0 1 3 8】

N, N'-ビス(4-メチルフェニル)-2, 7-ジアミノナフタレン6.40g(0.019mol)、9-ヨードフェナントレン16.0g(0.042mol)、銅2.4g(0.038mol)および炭酸カリウム7.8g(0.057mol)にテトラエチレングリコールジメチルエーテル30mLを加え、窒素下、200℃で8時間反応させた。反応終了後、反応液にテトラヒドロフラン(T H F) 150mLを加え不溶物を濾別した。濾液に含まれるT H Fを減圧留去した後、メタノールに注ぎ、得られた沈殿物を濾過により回収した。得られた沈殿物をシリカゲルカラムクロマトグラフィー(展開溶媒:ヘキサン/トルエン=3/1)によって精製し、メタノールで洗浄することにより乳白色粉末7.54g(0.011mol,収率58%)を得た。

20

【0 1 3 9】

この乳白色粉末0.72gを昇華精製したところ、薄黄色アメ状固体0.51g(収率72%)が回収された。回収物の質量分析を行ったところ、分子量が690であったことから、該薄黄色アメ状固体が例示化合物(1)であることを確認した。また、セイコー電子社製D S C-20により示差熱分析測定したところ、T gは152℃と高い値を示した。融点は高い非晶質性のために検出できなかった。

30

【0 1 4 0】

該薄黄色アメ状固体の¹H-NMR(CDCl₃,270MHz)データを以下に示す。

- 8.69 (d, 2H, J=9.3)
- 8.66 (d, 2H, J=9.3)
- 8.06 (dd, 2H, J=8.2, 0.9)
- 7.70 (dd, 2H, J=7.7, 1.6)
- 7.62 (dd, 2H, J=6.9, 1.6)
- 7.60-7.49 (m, 6H)
- 7.55 (s, 2H)
- 7.43 (ddd, 2H, 7.2, 6.9, 0.9)
- 7.13 (dd, 2H, J=8.9, 2.0)
- 7.02-6.99 (m, 8H)
- 6.89 (d, 2H, J=2.0)
- 2.26 (s, 6H)

40

【0 1 4 1】

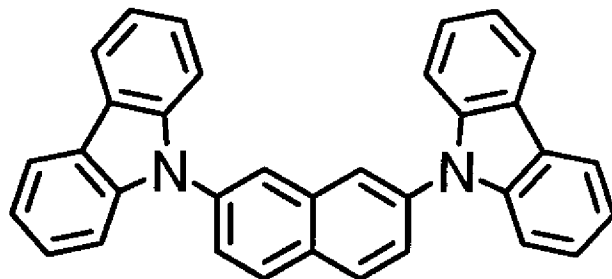
実施例2: 例示化合物(91)の合成

以下の構造式に示す本発明の2, 7-ジアミノナフタレン化合物(例示化合物(91))

50

：表－１のＮｏ． ９１の化合物）を合成した。

【化１６】

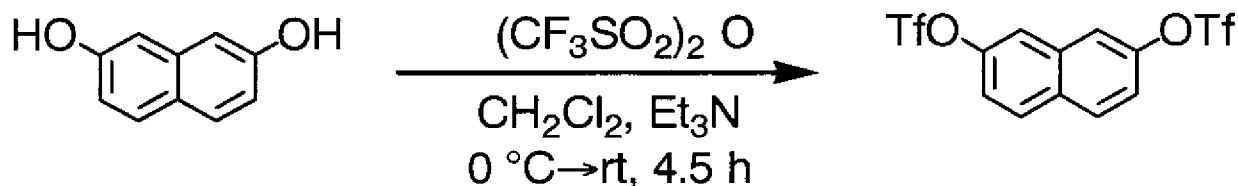


10

【０１４２】

１）２，７－ビス（トリフルオロメチルスルホニルオキシ）ナフタレンの合成

【化１７】



20

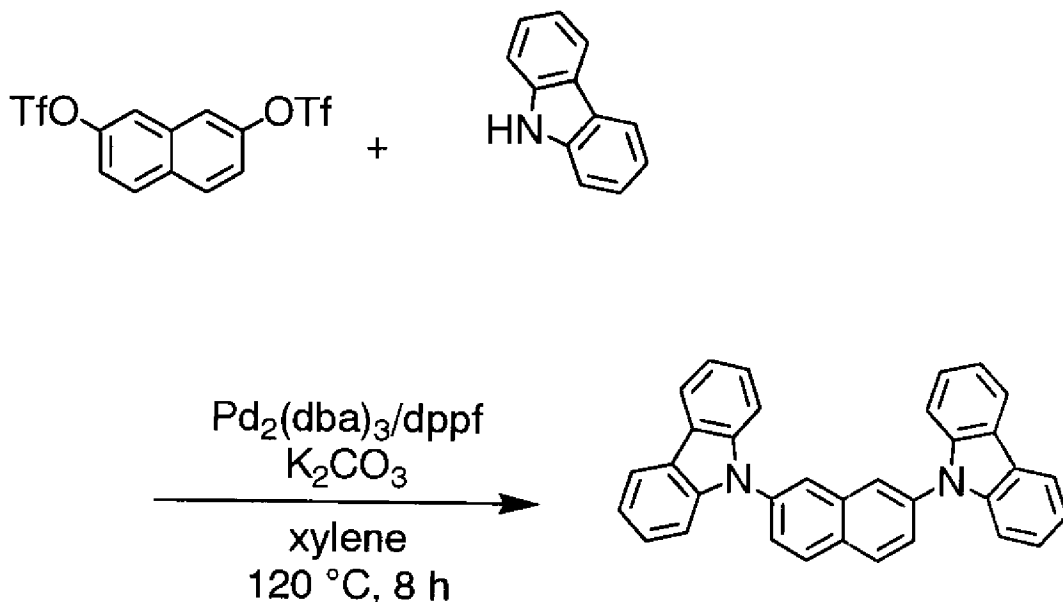
【０１４３】

２，７－ジヒドロキシナフタレン 11.8g (0.074mol) に塩化メチレン 300mL およびトリエチルアミン 50mL を加え、窒素下、0℃に冷却した。滴下ロートから無水トリフルオロスルホン酸 50.0g (0.177mol) を 2 時間かけて加えた後、2 時間かけて室温まで昇温し、室温で 30 分間攪拌した。反応混合物を水 300mL に放出し、攪拌した後、有機層を分取した。無水硫酸マグネシウムで乾燥、濾過、濃縮後、メタノールで再結晶することにより白色結晶 23.6g (0.056mol, 収率 75%) を得た。

【０１４４】

２）２，７－ビス（Ｎ－カルバゾリル）ナフタレンの合成

【化１８】



40

【０１４５】

２，７－ビス（トリフルオロメチルスルホニルオキシ）ナフタレン 3.50g (0.0083mol)

50

、カルバゾール3.31g (0.0198mol)、炭酸カリウム6.48g (0.0469mol)にキシレン30mLを加え、窒素下、80℃に昇温した後、トリス（ジベンジリデンアセトン）ジパラジウム（0）0.17g(0.00016mol)と1, 1'-ビス（ジフェニルホスフィノ）フェロセン0.36g(0.00065mol)から調製した触媒のキシレン溶液10mLを5分間かけて加えた。120℃で8時間反応させた後、室温に冷却後、濃縮した。クロロホルムおよび水を加え、析出物を溶解し、有機層を分取した。無水硫酸マグネシウムで乾燥、濾過、濃縮後、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（展開溶媒：ヘキサン／トルエン＝4／1）によって精製し、メタノールで洗浄することにより白色粉末0.85g (0.0019mol,収率22%)が得られた。

【0146】

10

この白色粉末の質量分析を行ったところ、分子量が458であったことから、該白色粉末が例示化合物（91）であることを確認した。また、セイコー電子社製DSC-20により示差熱分析測定したところ、T_gは93℃であり、融点は250℃であった。

【0147】

該白色粉末の¹H-NMR（CDCl₃, 270MHz）データを以下に示す。

8.20 (d, 2H, J=8.5)

8.19 (dd, 4H, J=8.0, 1.5)

8.12 (d, 2H, J=1.9)

7.79 (dd, 2H, J=8.5, 1.9)

7.53 (dd, 4H, J=8.0, 1.5)

7.45 (ddd, 4H, 8.0, 7.6, 1.5)

7.33 (ddd, 4H, 8.0, 7.6, 1.5)

20

【0148】

実施例3：例示化合物（1）の電気化学的・分光学的測定

BAS製エレクトロケミカルアナライザー650Aにより、過塩素酸テトラブチルアンモニウム0.1Mの塩化メチレン溶液中で、作用電極としてBAS製GCE、対電極としてPt線、参照電極としてAg線を用いて、例示化合物（1）のサイリックボルタンメトリーを測定したところ、酸化還元電位は0.83V vs. SCEであり、有機電界発光素子の正孔輸送層材料として適度な値を示した。なお、酸化還元電位は内標物質としてフェロセン／フェロセニウムを用いて換算した。

30

【0149】

また、真空蒸着することにより成膜した例示化合物（1）の薄膜試料のイオン化ポテンシャルを理研計器（株）製の紫外線電子分析装置（AC-1）を用いて測定したところ、5.07eVであり、有機電界発光素子の正孔輸送層材料として適度な値を示した。

【0150】

また、この薄膜試料の可視部分の吸収スペクトルを測定した結果を図4に示す。図4に示す如く、可視光領域において高い透明性を示した。

【0151】

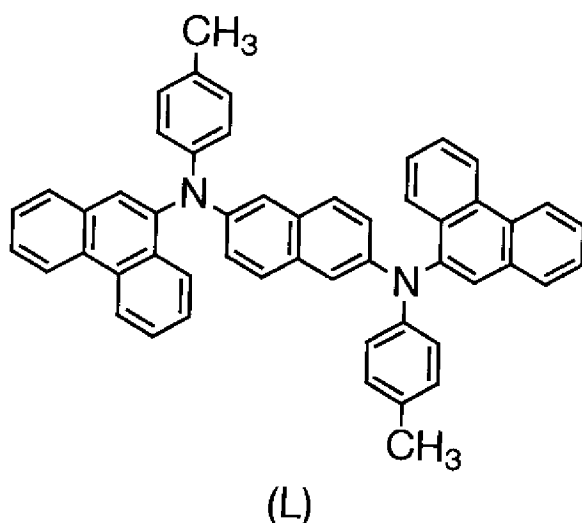
比較例1：比較化合物（L）の合成

2, 7-ジヒドロキシナフタレンの代わりに2, 6-ジヒドロキシナフタレンを用いた他は、実施例1と同様の方法で、下記構造式で表される比較化合物（L）を合成した。

40

【0152】

【化 1 9】



10

【0 1 5 3】

比較例 2：比較化合物（L）の電気化学的・分光学的測定

この比較化合物（L）について、実施例 3 と同様の方法でサイリックボルタンメトリーを測定したところ、酸化還元電位は 0.51 V vs. S C E であった。なお、酸化還元電位は内標物質としてフェロセン／フェロセニウムを用いて換算した。また、薄膜試料のイオン化ポテンシャルを実施例 3 と同様に測定したところ、4.75 eV であり、いずれも例示化合物（1）よりも低かった。また、薄膜試料の可視部分の吸収スペクトルを測定した結果は図 4 に示す通りであり、透明性についても例示化合物（1）より劣るものであった。

20

【0 1 5 4】

実施例 4：例示化合物（1）を使用した有機電界発光素子の作製

図 3 に示す構造を有する有機電界発光素子を以下の方法で作製した。

【0 1 5 5】

ガラス基板上にインジウム・スズ酸化物（I T O）透明導電膜を 120 nm 堆積したもの（ジオマテック社製；電子ビーム成膜品；シート抵抗 15 Ω / sq）を通常の写真リソグラフィ技術と塩酸エッチングを用いて 2 mm 幅のストライプにパターンニングして陽極 2 を形成した。パターン形成した I T O 基板を、アセトンによる超音波洗浄、純水による水洗、イソプロピルアルコールによる超音波洗浄の順で洗浄後、窒素ブローで乾燥させ、最後に紫外線オゾン洗浄を行った。

30

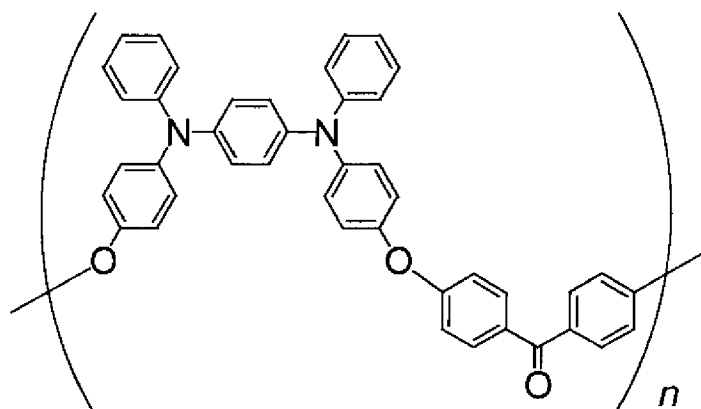
【0 1 5 6】

次に、陽極バッファ層 3 として下記構造の芳香族ジアミン含有ポリエーテル（P-1）（重量平均分子量 25,300；ガラス転移温度 171 $^{\circ}$ C）およびこの（P-1）に対し 10 重量 % の下記化合物（P-2）を下記の条件で、上記ガラス基板上にスピコートした。

【0 1 5 7】

40

【化 2 0】

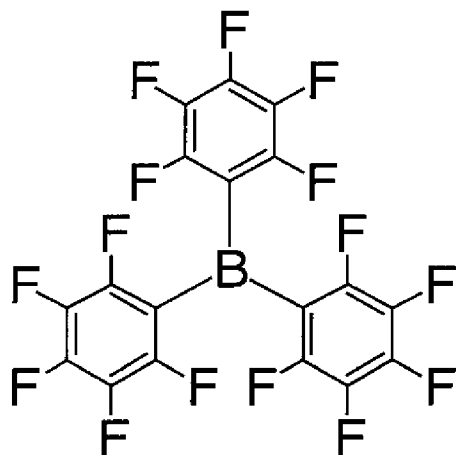


(P-1)

10

【 0 1 5 8】

【化 2 1】



(P-2)

20

30

【 0 1 5 9】

溶媒 : 安息香酸エチル
 (P-1) 濃度 : 20 [mg/ml]
 (P-2) 濃度 : 2 [mg/ml]
 スピナ回転数 : 1500 [rpm]
 スピナ回転時間 : 30 [秒]
 乾燥条件 : 100℃で1.5時間

40

【 0 1 6 0】

上記のスピノコートにより30nmの膜厚の均一な薄膜形状を有する陽極バッファ層3を形成した。

【 0 1 6 1】

次に、陽極バッファ層3を塗布成膜した基板1を真空蒸着装置内に設置した。この装置の粗排気を油回転ポンプにより行った後、装置内の真空度が 2×10^{-6} Torr (約 2.7×10^{-4} Pa) 以下になるまで液体窒素トラップを備えた油拡散ポンプを用いて排気した。

【 0 1 6 2】

50

この装置内に配置されたセラミックルツボに例示化合物（１）を入れ、ルツボの周囲のタンタル線ヒーターで加熱して蒸着を行った。蒸着時の真空度は 1.3×10^{-6} Torr（約 1.7×10^{-4} Pa）で、蒸着速度 $0.1 \sim 0.17$ nm/秒（平均 0.13 nm/秒）で膜厚 40 nmの正孔輸送層４を成膜した。

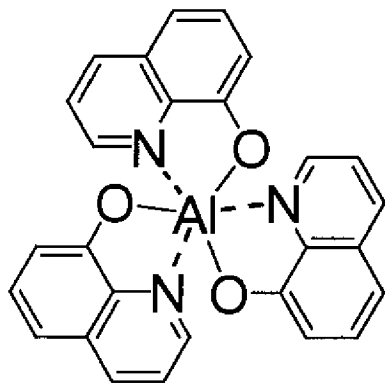
【０１６３】

引続き、発光層５の材料として、以下の構造式（Ｑ－１）および（Ｑ－２）に示すアルミニウムの８－ヒドロキシキノリン錯体（ $\text{Al}(\text{C}_9\text{H}_6\text{NO})_3$ ）およびC545Tを同時に蒸着した。アルミニウムの８－ヒドロキシキノリン錯体に対するC545Tの割合は 0.8 重量％になるようにした。

【０１６４】

10

【化２２】

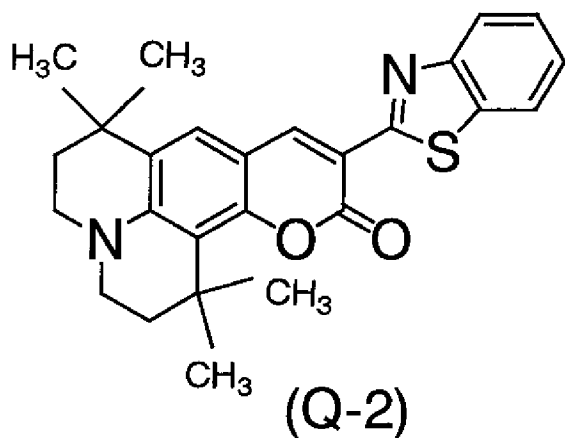


20

(Q-1)

【０１６５】

【化２３】



30

(Q-2)

40

【０１６６】

この蒸着時の真空度は 0.7×10^{-6} Torr（約 0.9×10^{-4} Pa）、アルミニウムの８－ヒドロキシキノリン錯体の蒸着速度は 0.15 nm/秒、C545Tの蒸着速度は 0.0012 nm/秒で、膜厚 30 nmの発光層５を成膜した。

【０１６７】

続いて、電子輸送層６として、上記のアルミニウムの８－ヒドロキシキノリン錯体（Ｑ－１）を正孔輸送層４と同様に蒸着し、この時のアルミニウムの８－ヒドロキシキノリン錯体蒸着時の真空度は 0.6×10^{-6} Torr（約 0.8×10^{-4} Pa）、蒸着速度は 0.2 nm/秒で、蒸着された電子輸送層６の膜厚は 30 nmであった。

50

【0168】

なお、上記の正孔輸送層4、発光層5、および電子輸送層6を真空蒸着する時の基板温度は室温に保持した。

【0169】

ここで、電子輸送層6までの蒸着を行った素子を一度前記真空蒸着装置内より大気中に取り出し、陰極蒸着用のマスクとして2mm幅のストライプ状シャドーマスクを、陽極2のITOストライプと直交するように素子に密着させた。この素子を別の真空蒸着装置内に設置し、有機層形成時と同様にして装置内の真空度が 2.5×10^{-6} Torr (約 3.2×10^{-4} Pa) 以下になるまで排気した。

【0170】

続いて、陰極7として、フッ化リチウム (LiF) をモリブデンボートを用いて、蒸着速度 0.01nm/秒 、真空度 5.8×10^{-6} Torr (約 7.5×10^{-4} Pa) で蒸着して、 0.3nm の膜厚に電子輸送層6の上に成膜した。次に、アルミニウムを同様にモリブデンボートにより加熱して、蒸着速度 0.5nm/秒 、真空度 1×10^{-5} Torr (約 1.3×10^{-3} Pa) で膜厚 80nm のアルミニウム層を形成して陰極7を完成させた。以上の2層型陰極7の蒸着時の基板温度は室温に保持した。

【0171】

以上の様にして、 $2\text{mm} \times 2\text{mm}$ のサイズの発光面積部分を有する有機電界発光素子が得られた。この素子の発光特性を表-2に、駆動寿命を表-3に示す。表-2において、発光輝度は 250mA/cm^2 の電流密度での値、発光効率は 100cd/m^2 での値、輝度/電流は輝度-電流密度特性の傾きを、電圧は 100cd/m^2 での値を各々示す。また、表-3において、駆動寿命は初期輝度 5000cd/m^2 、室温駆動での輝度半減時間を示す。

【0172】

表-2に示すように、例示化合物(1)を含む正孔輸送層の使用により、駆動電圧の低下が達成され、高輝度、高効率の素子が得られたことが明らかである。また、表-3より、駆動寿命の長い、耐熱性に優れる素子が得られたことが明らかである。

【0173】

比較例3：比較化合物(L)を使用した有機電界発光素子の作製

正孔輸送層4の材料として例示化合物(1)の代わりに、2,6-ジアミノナフタレン化合物である比較化合物(L)を用いたこと以外は、実施例4と同様にして有機電界発光素子を作製した。この素子の発光特性を表-2に示す。

【0174】

比較例4：比較化合物(A-3)を使用した有機電界発光素子の作製

正孔輸送層4の材料として例示化合物(1)の代わりに、前記4,4'-ビス[N-(1-ナフチル)-N-フェニルアミノ]ビフェニル(A-3)を用いたこと以外は、実施例4と同様にして有機電界発光素子を作製した。この素子の発光特性を表-2に、駆動寿命を表-3に示す。

【0175】

表-2, 表-3に示すように、比較例3, 4で作製した素子の発光効率は実施例4で作製した素子に比べて低く、また駆動寿命が短いものであった。

【0176】

10

20

30

40

【表 17】

表－2

	発光輝度 [cd/m ²]	発光効率 [lm/W]	輝度/電流 [cd/A]	電圧 [V]
実施例4	38370	11.6	12.6	3.5
比較例3	23180	4.2	6.9	5.1
比較例4	28180	9.0	10.1	3.6

10

【0177】

【表 18】

表－3

	駆動寿命 [h]
実施例4	150
比較例4	90

20

【産業上の利用可能性】

【0178】

本発明による有機電界発光素子はフラットパネル・ディスプレイ（例えばOAコンピューター用は壁掛けテレビ）の分野や面発光体としての特徴を生かした光源（例えば、複写機の光源、液晶ディスプレイや計器類のバックライト光源）、表示板、標識灯への応用が考えられ、特に、高耐熱性、長寿命性が要求される車載用表示素子としてはその技術的価値は大きいものである。

30

【図面の簡単な説明】

【0179】

【図1】本発明の有機電界発光素子の実施の形態の一例を示した模式的断面図である。

【図2】本発明の有機電界発光素子の実施の形態の別の例を示した模式的断面図である。

【図3】本発明の有機電界発光素子の実施の形態の別の例を示した模式的断面図である。

【図4】実施例3および比較例2にて測定した、薄膜試料の吸収スペクトルチャートである。

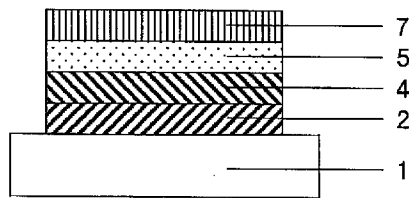
【符号の説明】

【0180】

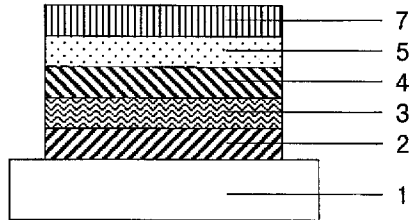
- 1 基板
- 2 陽極
- 3 陽極バッファ層
- 4 正孔輸送層
- 5 発光層
- 6 電子輸送層
- 7 陰極

40

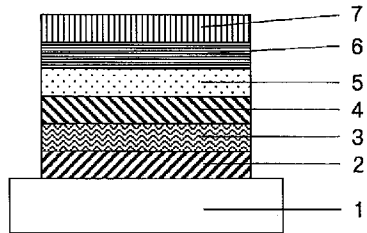
【図 1】



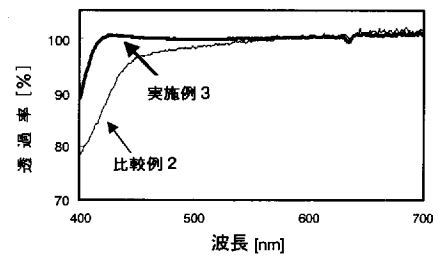
【図 2】



【図 3】



【図 4】



フロントページの続き

(51)Int.Cl. ⁷	F I	テーマコード (参考)
C 0 7 D 215/46	C 0 7 D 215/46	4 C 0 3 7
C 0 7 D 217/22	C 0 7 D 217/22	4 C 0 5 5
C 0 7 D 219/06	C 0 7 D 219/06	4 C 0 5 6
C 0 7 D 219/14	C 0 7 D 219/14	4 C 0 6 5
C 0 7 D 221/10	C 0 7 D 221/10	4 C 0 6 9
C 0 7 D 223/24	C 0 7 D 223/24	4 C 2 0 4
C 0 7 D 241/48	C 0 7 D 241/48	4 H 0 0 6
C 0 7 D 265/38	C 0 7 D 265/38	
C 0 7 D 279/26	C 0 7 D 279/26	
C 0 7 D 295/12	C 0 7 D 295/12	Z
C 0 7 D 307/91	C 0 7 D 307/91	
C 0 7 D 333/36	C 0 7 D 333/36	
C 0 7 D 333/54	C 0 7 D 333/54	
C 0 7 D 471/04	C 0 7 D 471/04	1 1 2 T
C 0 9 K 11/06	C 0 9 K 11/06	6 9 0
H 0 5 B 33/14	H 0 5 B 33/14	A
H 0 5 B 33/22	H 0 5 B 33/22	D

(72)発明者 相馬 実

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町 1 0 0 0 番地 株式会社三菱化学科学技術研究センター内

(72)発明者 佐藤 佳晴

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町 1 0 0 0 番地 株式会社三菱化学科学技術研究センター内

F ターム(参考) 3K007 AB03 AB04 AB06 AB11 AB14 DB03 FA01

4C023 GA01

4C031 LA05

4C034 DU00

4C036 AA02 AA14

4C037 SA05

4C055 AA01 BA01 BA02 BA52 BB04 BB10 CA01 CA02 CA52 CB10

DA01 DA52 DB10

4C056 AA02 AB01 AC03 AD05 AE04 ED03

4C065 AA04 AA18 BB09 CC09 DD02 EE02 HH01 JJ01 KK01 LL07

PP10

4C069 AC07

4C204 CB25 DB01 EB01 FB08 FB16 GB01 GB07 GB32

4H006 AA01 AA03 AB91 AB92

【要約の続き】

成する環のうちの少なくとも 1 つは、3 環以上が縮合してなる、置換基を有していても良い芳香族縮合環基を表す。
)

【選択図】 なし